

УДК 534.286:548.4

ПОГЛОЩЕНИЕ ПРОДОЛЬНЫХ И ПОПЕРЕЧНЫХ ЗВУКОВЫХ ВОЛН В КРИСТАЛЛАХ, СОДЕРЖАЩИХ ПРИМЕСИ

Ю. А. Логачев

Проведено теоретическое рассмотрение поглощения звука в диэлектриках, содержащих примеси. Выражения для коэффициентов поглощения продольных и поперечных звуковых волн принципиально различны: если для поперечных волн влияние примеси качественно такое же, как на теплопроводность, то для продольных влияние примесей слабее и в принципе возможна ситуация, когда примеси вообще не влияют на вязкостное слагаемое в коэффициенте поглощения. Анализируется температурная зависимость отношения поглощения в примесном кристалле к поглощению в чистом кристалле. Полученные результаты согласуются с экспериментальными данными по поглощению звука в Si—Ge.

Экспериментальное исследование поглощения ультразвука в кристаллах с примесями [1, 2] показало, что примеси по-разному влияют на поглощение продольных и поперечных звуковых волн. Так, в Si, содержащем 4% Ge, отношение поглощения поперечных волн A_T к поглощению в чистом кристалле A_{T0} составило $\sim 1/3$ при $T=300^\circ\text{K}$ и $\sim 1/6$ при $T=77^\circ\text{K}$. Для продольных волн при тех же температурах $(A_{L0}-A_L)/A_{L0}\sim 20\%$ и 5% соответственно. Слабое влияние примесей на поглощение продольных волн было обнаружено и в более ранних работах [3—5], однако поглощение поперечных звуковых волн при этом не исследовалось. Все измерения относятся к области Ахизера $\Omega\tau < 1$ (Ω — частота звука, τ — фоновое время релаксации), так что, поскольку $A \sim \sum f(k)\tau(k)$, можно было бы ожидать, что $A/A_0 \approx \kappa/\kappa_0$, где κ — теплопроводность. Однако $\kappa/\kappa_0 \approx 0,3 A_T/A_{T0}$ при $T=300^\circ\text{K}$ и $\kappa/\kappa_0 \approx 0,2 A_T/A_{T0}$ при $T=77^\circ\text{K}$, т. е. влияние примесей на теплопроводность сильнее, чем на поглощение поперечных звуковых волн. Для продольных волн это расхождение еще больше. Частный случай — «примесный предел» $\tau_i/\tau_l \rightarrow 0$ (где τ_i — время релаксации, связанное с неупругим фон-фонным рассеянием, τ_l — время релаксации, связанное с упругим рассеянием на примесях) рассмотрен в работе [6] при предположении независимости τ_i и τ_l от частоты и направления волнового вектора фонона; если в работе [6] ввести $\tau_i^{-1} \sim \omega^4$, то в примесном пределе выражение для A расходится.

Теория затухания длинноволновых фононов в кристалле с большой концентрацией примеси построена в работе [7], однако полученные выражения еще не определяют полностью поглощение звука. При рассмотрении затухания фонона не учитываются такие эффекты, как влияние модуляции температуры продольной звуковой волной и термоупругостные потери; они играют значительную роль при $\Omega\tau \ll 1$ и, хотя и исчезают в пределе $\Omega\tau \gg 1$ на фоне «резонансного поглощения» [8], в промежуточной области могут быть не малы.

Ниже с помощью кинетического подхода рассмотрено поглощение продольных и поперечных звуковых волн в кристаллах с примесями при $\Omega \ll \ll \tau_i^{-1}(k_T) + \tau_l^{-1}(k_T)$, где k_T — волновой вектор тепловых фононов. Показано, что принципиальное различие между A_T и A_L получается именно

вследствие наличия эффектов, связанных с модуляцией свойств решетки звуком. Полученные выражения для A позволяют объяснить экспериментально наблюдаемое различие в поглощении продольных и поперечных звуковых волн в примесных кристаллах, а также различную температурную зависимость отношений A_T/A_{T_0} и A_L/A_{L_0} .

В решетке с примесями рассеяние тепловых фононов происходит вследствие процессов двух типов: неупругое фонон-фононное рассеяние (i), определяющее рассеяние в чистом кристалле, и упругое рассеяние на примесях (l). В том случае, если «чистый» диэлектрик не является изотопически чистым, то изотопическое рассеяние формально можно объединить с рассеянием на примесях.

Функция распределения тепловых фононов, выведенная звуковой волной из равновесия, релаксирует к локально-равновесной функции N_0^* , характеризующей то состояние, к которому придет $N(\mathbf{k}, \mathbf{r})$ в случае теплоизоляции от $N(\mathbf{r}' \neq \mathbf{r})$ при «замороженной» деформации, вызванной звуком. При этом, поскольку упругое рассеяние не приводит к перераспределению фононов с разной энергией, а изменяет только направление \mathbf{k} , то N_{0i} , к которой ведет релаксация, обусловленная упругими процессами, отличается от N_{0i} и зависит от частоты, т. е.

$$(1) \quad N_{0i}(\mathbf{r}, t) = \{\exp[\hbar\omega(\mathbf{r}, t)/kT'(\mathbf{r}, t)] - 1\}^{-1}$$

и

$$(2) \quad N_{0l}(\mathbf{r}, \omega, t) = \{\exp[\hbar\omega(\mathbf{r}, t)/kT'(\mathbf{r}, \omega, t)] - 1\}^{-1}.$$

Полное кинетическое уравнение имеет вид

$$(3) \quad \frac{\partial N}{\partial t} + \left\{ \frac{\partial N}{\partial \mathbf{r}} \frac{\partial \omega}{\partial \mathbf{k}} - \frac{\partial N}{\partial \mathbf{k}} \frac{\partial \omega}{\partial \mathbf{r}} \right\} = (\dot{N}_i)_{\text{cr}} + (\dot{N}_l)_{\text{cr}},$$

где все функции зависят от \mathbf{k} , s : \mathbf{k} — волновой вектор, s — номер ветви. В уравнении (3)

$$(4) \quad (\dot{N}_j)_{\text{cr}} = -\frac{N - N_{0j}}{\tau_j}; \quad j = i, l.$$

Разлагая N_{0j} с точностью до членов первого порядка по деформации

$$(5) \quad N_{0j} = N_{00} + \frac{\partial N_{00}}{\partial \omega} \Delta\omega + \frac{\partial N_{00}}{\partial T} \Delta T_j; \quad j = i, l,$$

где

$$(6) \quad \Delta T_i = T'(\mathbf{r}, t) - T; \quad \Delta T_l = T'(\mathbf{r}, \omega, t) - T$$

и подставляя все зависящие от \mathbf{r}, t величины в виде $\sim e^{i(\mathbf{K}\mathbf{r} - \Omega t)}$, нетрудно получить после алгебраических преобразований выражение

$$(7) \quad n = \frac{TC}{\hbar\omega} U \frac{\gamma[\tau_i^{-1} + \tau_l^{-1} + i\mathbf{K}\mathbf{v}] - \tilde{\gamma}_i \tau_i^{-1} - \tilde{\gamma}_l \tau_l^{-1}}{\tau_i^{-1} + \tau_l^{-1} - i(\Omega - \mathbf{K}\mathbf{v})},$$

где C — теплоемкость, \mathbf{K} — волновой вектор звука. Здесь введены обозначения

$$(8) \quad \gamma U = -\frac{\Delta\omega}{\omega}; \quad \tilde{\gamma}_j U = -\frac{\Delta T_j}{T}; \quad j = i, l,$$

где γ — коэффициент Грюнайна, U — деформация. Чтобы не загромождать формулы, тензорные индексы опущены.

Диссипативная функция определяется двумя релаксационными процессами:

$$(9) \quad TS = \frac{1}{\partial N / \partial (\hbar\omega)} \left\{ \left\langle n - n_{0i} \left[\frac{n - n_{0i}}{\tau_i} \right] \right\rangle + \left\langle n - n_{0l} \left[\frac{n - n_{0l}}{\tau_l} \right] \right\rangle \right\}.$$

* Локальные характеристики можно вводить для областей с размерами L при условии $\lambda_{\text{тф}} \ll L \ll \lambda_{\text{зв}}$ [8].

Учитывая разложения (5), получаем

$$(10) \quad TS = |U|^2 \sum_{k,s} CT \frac{1}{(\tau_i^{-1} + \tau_l^{-1})^2 + (\Omega - \mathbf{Kv})^2} \{ \tau_i^{-1} |i\Omega\gamma +$$

$$+ \tilde{\gamma}_i [\tau_i^{-1} - i(\Omega - \mathbf{Kv})] - \tilde{\gamma}_l \tau_i^{-1}|^2 + \tau_l^{-1} |i\Omega\gamma + \tilde{\gamma}_l [\tau_l^{-1} - i(\Omega - \mathbf{Kv})] - \tilde{\gamma}_i \tau_l^{-1}|^2 \}$$

и далее из уравнений теории упругости с учетом диссипации [9] мы получаем выражение для коэффициента затухания (в единицу времени):

$$(11) \quad A = \frac{T}{2\rho v_{33}^2} \sum_{k,s} C \frac{1}{(\tau_i^{-1} + \tau_l^{-1})^2 + (\Omega - \mathbf{Kv})^2} \times$$

$$\times \{ \tau_i^{-1} [(\Omega\gamma + \tau_i^{-1} \text{Im}(\tilde{\gamma}_i - \tilde{\gamma}_l) - (\Omega - \mathbf{Kv}) \text{Re} \tilde{\gamma}_i)^2 +$$

$$+ (\tau_i^{-1} \text{Re}(\tilde{\gamma}_i - \tilde{\gamma}_l) + (\Omega - \mathbf{Kv}) \text{Im} \tilde{\gamma}_i)^2] \} + \{ \tau_l^{-1} [(\Omega\gamma + \tau_l^{-1} \text{Im}(\tilde{\gamma}_l - \tilde{\gamma}_i) -$$

$$- (\Omega - \mathbf{Kv}) \text{Re} \tilde{\gamma}_l)^2 + (\tau_l^{-1} \text{Re}(\tilde{\gamma}_l - \tilde{\gamma}_i) + (\Omega - \mathbf{Kv}) \text{Im} \tilde{\gamma}_l)^2] \}.$$

Величины $\tilde{\gamma}_i$ и $\tilde{\gamma}_l$ определяются из системы уравнений

$$(12) \quad \begin{cases} \sum_{k,s} \hbar\omega(k,s) \dot{N}_i = 0 \\ \sum_{k,s} \delta(\omega - \omega(k,s)) \dot{N}_i = 0, \end{cases}$$

первое из них означает требование сохранения энергии при релаксации, второе — неизменность числа фононов данной частоты при упругом рассеянии.

Рассмотрим сначала предел $\Omega\tau \rightarrow 0$ ($\tau^{-1} = \tau_i^{-1} + \tau_l^{-1}$). Решение системы (12) в этом случае с использованием формул (5) и (7) дает

$$(13) \quad \begin{aligned} \tilde{\gamma}_i &= (\bar{\gamma}^\omega) + 0(\Omega\tau); & \tilde{\gamma}_l &= (\bar{\gamma}^\omega) + 0(\Omega\tau), \\ \tilde{\gamma}_l - \tilde{\gamma}_i &= i\Omega [(\bar{\gamma}^\omega) \tau_i^\omega - (\bar{\gamma}^\omega) \tau_l^\omega] \equiv i\Omega f. \end{aligned}$$

Здесь введены обозначения

$$(14) \quad \bar{a} = \sum_{k,s} C \frac{a\tau}{\tau_i\tau_l} / \sum_{k,s} C \frac{\tau}{\tau_i\tau_l}$$

и

$$\bar{a}^\omega = \sum_{k,s} \frac{a\tau\delta(\omega - \omega(k,s))}{\tau_i\tau_l} / \sum_{k,s} \frac{\tau\delta(\omega - \omega(k,s))}{\tau_i\tau_l}.$$

Опуская преобразования, приведем выражение для коэффициентов поглощения для продольных и поперечных звуковых волн при $\tau_i \ll \tau_l$ (k_T):

$$(15) \quad A_L = \frac{T}{2\rho v_L^2} \sum_{k,s} C \left\{ \tau [\Omega^2 (\gamma - (\bar{\gamma}^\omega))^2 + (\mathbf{Kv})^2 (\bar{\gamma}^\omega)^2] + \frac{\Omega^2 f^2}{\tau_i + \tau} \right\},$$

где (\bar{a}^ω) означает двойное усреднение. Для поперечных волн средние значения $\bar{\gamma}^\omega$ и γ равны нулю, так что

$$(16) \quad A_T = \frac{T}{2\rho v_T^2} \sum_{k,s} C \tau \Omega^2 \gamma^2.$$

В формуле (15) первое слагаемое по форме совпадает с вязкостным слагаемым в коэффициенте поглощения звука в чистом кристалле, второе — с

термоупругостным слагаемым, однако вместо τ_i (в чистом кристалле) стоит $\tau = (\tau_i^{-1} + \tau_l^{-1})^{-1}$. Слагаемое с f^2 частично компенсирует изменение вязкостного слагаемого для продольного звука. Предположим для простоты $\tau_i = \tau_i(\omega)$ и рассмотрим две предельные возможности: а) γ зависят только от частоты, б) γ зависят только от направления волнового вектора фонона (подчеркнем, что речь идет о $\gamma \equiv \gamma^L(k, s)$ для продольных волн, так как для поперечных волн первая ситуация невозможна). Введем обозначение $l = k/k$. Пусть теперь $\gamma = \gamma(l)$, но не зависит от ω . Тогда $\bar{\gamma}^\omega = \bar{\gamma}$ и, поскольку $\bar{\tau}_i^\omega(\omega) = \tau_i$, $f = 0$ и вязкостное слагаемое в (15) приобретает вид

$$(17) \quad A_B \sim \sum_{k,s} C \tau (\gamma - \bar{\gamma})^2.$$

В том случае, когда $\gamma = \gamma(\omega)$, но не зависит от l и s (номер ветви) $\bar{\gamma}^\omega = \gamma$ и $f = \tau_i(\gamma - \bar{\gamma})$. Тогда

$$(18) \quad A_B \sim \sum_{k,s} C \left(\tau + \frac{\tau_i^2}{\tau_i + \tau_l} \right) (\gamma - \bar{\gamma})^2 = \sum_{k,s} C \tau_i (\gamma - \bar{\gamma})^2,$$

т. е. вязкостное слагаемое совпадает с A_{B0} в чистом кристалле и все изменение поглощения связано с изменением термоупругостного слагаемого A_{TU} , которое изменяется как теплопроводность. Если учесть всегда существующую зависимость $\gamma(s)$, то компенсация ΔA_B неполная.

Для поперечных звуковых волн изменение A_T полностью определяется изменением τ . Результат (18) легко понять, если γ изотропны, то упругая релаксация «по углам», определяемая τ_i (которая в случае анизотропии γ приводила бы к выравниванию температур $T'(\omega)$), не дает вклада в вязкостное поглощение. Совершенно аналогичная ситуация для неупругой релаксации имеет место в чистом кристалле, если все γ одинаковы, то поглощения продольных звуковых волн нет. В примесном кристалле при изотропных (и не зависящих от s) γ влияние примесей на A_L осуществляется только через κ в A_{TU} .

Экспериментальные результаты — слабое влияние примесей на A_L — свидетельствуют о том, что зависимость $\gamma(\omega)$ является более существенной, чем зависимость $\gamma(l)$ в Si. Этот вывод согласуется с данными по аномальному температурному ходу коэффициента теплового расширения [10], отсюда следует, что, хотя $\bar{\gamma}(k=0)$ положительны [3], γ должны быть отрицательны для поперечных ветвей при частотах, соответствующих пику плотности состояний. Примерный ход $\gamma(\omega)$ для Si, согласующийся как с данными по тепловому расширению, так и с данными по поглощению звука в примесном Si, показан на фиг. 1. По существу именно такой вид $\gamma(\omega)$ следует из расчета [11].

Можно указать возможные причины того, что $A_T/A_{T0} \neq \kappa/\kappa_0$. Во-первых, в выражения для A входит полное время релаксации, где N и U процессы суммируются, в то время как в теплопроводности время релаксации $\tau_k^{-1} = \tau_u^{-1} + \alpha \tau_N^{-1}$, где α зависит от интенсивности «резистивных» процессов. Таким образом, в A величина τ_l^{-1} добавляется к большей величине, чем в κ ; соответственно эффект может быть меньше. Во-вторых, τ входит с разными весами в κ и в $A(v^2$ и $\gamma^2)$, что приводит к различной зависимости интегральных величин от концентрации примеси.

Интересно отметить, что эксперименты по поглощению звука A_L в примесном кристалле могут служить своеобразным «тестом» для выяснения того, можно ли рассчитывать коэффициент поглощения в чистом кристалле, используя значения γ , полученные из теории упругости. Это приближение, постоянно используемое в работах Мэзона [3], будет оправдано только в том случае, если поглощение продольных звуковых волн меняется при введении примесей так же, как и поперечного, т. е. если более существенной является зависимость $\gamma(l)$. В противном случае, если

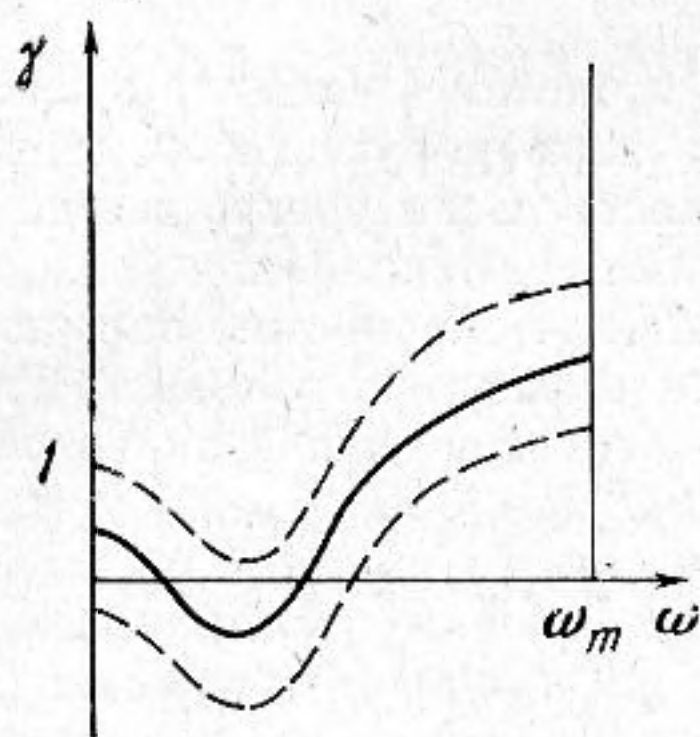
$A_L \approx A_{L0}$ (и если разброс γ по s невелик) первостепенную важность имеет дисперсия $\gamma(\omega)$ и длинноволновое приближение для γ неприменимо.

Рассмотрим теперь температурную зависимость A/A_0 при $\Omega \ll \tau^{-1}$ без ограничения $\tau_i(k_T) \approx \tau_l(k_T)$. Из формулы (11) для A_T непосредственно следует

$$(19) \quad A_T = \frac{T}{2\rho v_T^2} \sum_{k,s} \frac{\tau^{-1}}{(\tau^{-1})^2 + (\Omega - \mathbf{Kv})^2} C \Omega^2 \gamma^2.$$

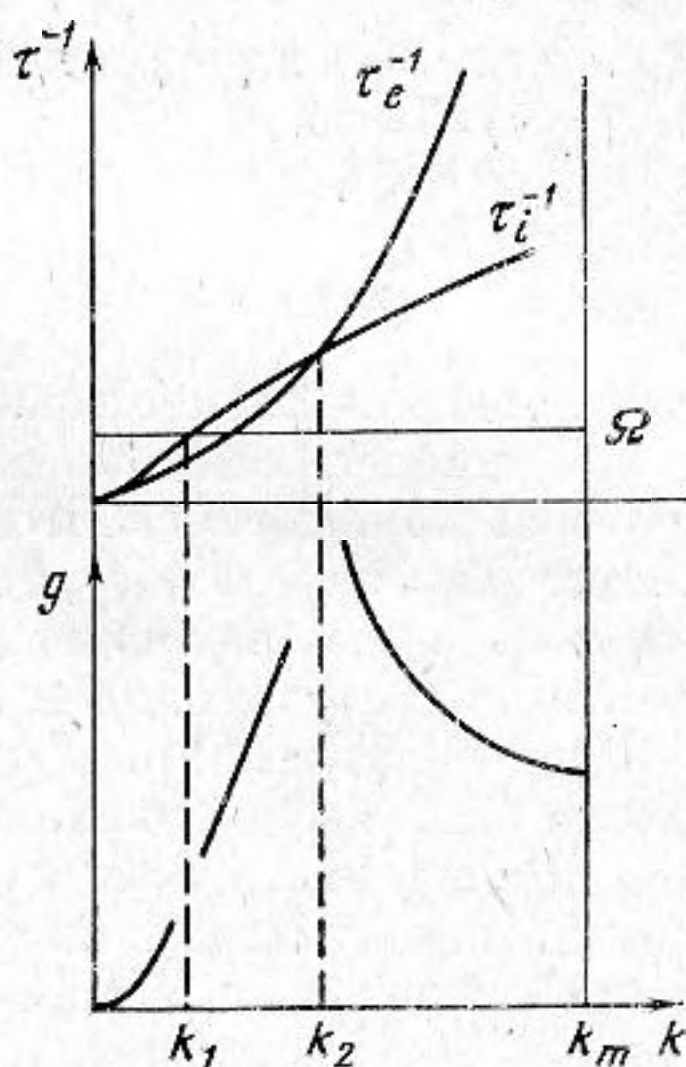
Из-за зависимости $\tau(k)$ существует такое k_1 , что $\Omega = \tau^{-1}(k_1)$. При $k < k_1$ интегрирование «размазанной» δ -функции дает зависимость подынте-

Фиг. 1. Примерный ход $\gamma(\omega)$ после усреднения по направлениям \mathbf{k} . Пунктиром показан возможный разброс $\gamma(\mathbf{k})$ для данной частоты



Фиг. 1

Фиг. 2. Вид подынтегральной функции в выражении для A_T



Фиг. 2

гральной функции $g \sim k^2$ (см. фиг. 2). При $k > k_1$, но $k < k_2$ где k_2 определяется из условия $\tau_l(k_2) = \tau_e(k_2)$, $g \sim k^2 / \tau_i^{-1}$. Если предположить $\tau_i^{-1} \sim k$ (механизм Ландау — Румера), то $g \sim k$. Наконец, при $k > k_2$ основную роль играет τ_l^{-1} и $g \sim 1/k^2$. Подынтегральная функция $g(k)$ имеет максимум при k_2 , так что по порядку величины

$$(20) \quad A_T \sim T \int_{k_2}^{k_m} k^2 \tau_l dk,$$

где k_m — предельное значение волнового вектора. При $\tau_i^{-1} \sim a_i T k$ и $\tau_l^{-1} \sim a_l c k^4$ (a_i и a_l — некоторые численные коэффициенты) значение $k_2 = \left(\frac{a_i T}{a_l c} \right)^{1/3}$, т. е.

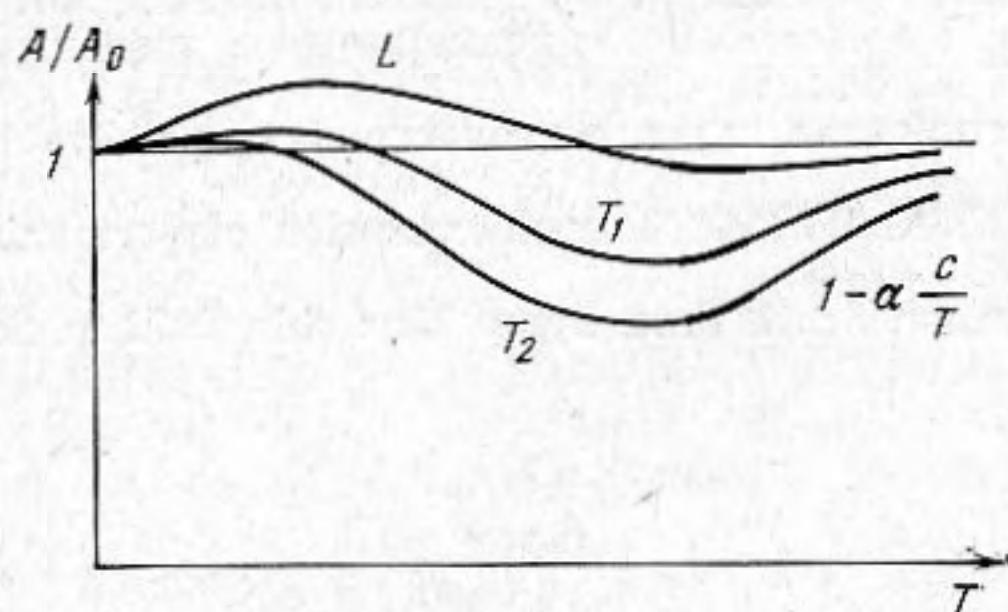
$$(21) \quad A_T \sim \frac{1}{a_i} \left(\frac{a_i T}{a_l c} \right)^{2/3}.$$

Это означает, что $A_T/A_{T0} \sim \left(\frac{T}{c} \right)^{2/3}$ и растет с температурой, что качественно согласуется с экспериментальными данными [1]. Зависимость A_T/A_{T0} от концентрации также согласуется с экспериментом.

Подынтегральная функция в выражении для A_L не имеет максимума из-за дополнительного слагаемого и растет с ростом k , т. е. вклад в поглощение вносят все фононы, а не выделенная группа дотепловых фононов, как для поперечных звуковых волн. Соответственно изменение нижнего

предела интегрирования слабо сказывается на значении интеграла; зависимость A_L/A_{L0} от температуры должна быть слабее, чем A_T/A_{T0} . При повышении температуры $\Omega\tau \rightarrow 0$ и в (16) $\tau \rightarrow \tau_i$; легко показать, что $A_T/A_{T0} \rightarrow 1$ при $T \rightarrow \infty$, как $1 - \alpha c/T$. Для A_L при $\Omega\tau \rightarrow 0$ то же $A_L/A_{L0} \rightarrow 1$.

Оценим температурный ход A/A_0 в области больших $\Omega\tau$. Поглощение продольных звуковых волн идет вследствие процессов $L_{зв} + L$, которые ста-



Фиг. 3. Схематический ход A/A_0 как функции T . Жирными линиями условно показаны экспериментальные данные [1]. Кривые T_1 и T_2 различаются концентрацией примеси: $c_2 > c_1$

новятся возможными при конечном времени жизни тепловых фононов; при простом законе дисперсии [8]

$$(22) \quad A_L \sim \int f(k') \{ \text{arctg}(2\Omega\tau) - \text{arctg}(\alpha\Omega\tau k'^2) \} dk',$$

где α — некоторый численный коэффициент. Значение k_0' , соответствующее максимальному числу тепловых фононов, пропорционально T , т. е.

$$(23) \quad A_L \sim [\text{arctg}(2\Omega\tau) - \text{arctg}(\alpha' T^2 \Omega\tau)]$$

и при $\Omega\tau \rightarrow \infty$

$$(24) \quad A_L \sim \frac{\pi}{2} - \text{arctg}(\alpha' T^2 \Omega\tau).$$

Уменьшение τ при введении примесей приводит к увеличению A_L , т. е. $A_L/A_{L0} > 1$. При $T \rightarrow 0$ выражение в квадратных скобках формулы (23) стремится к $\pi/2$ и $A_L/A_{L0} \rightarrow 1$. Для поперечных волн рассеяние $T_{зв} + T$ дает такой же характер зависимости; рассеяние $T_{зв} + L$ дает $A_T/A_{T0} < 1$, т. е. результат будет определяться соотношением вероятностей указанных процессов. Схематический температурный ход A/A_0 во всем интервале температур изображен на фиг. 3. Понижение температуры, по-видимому, даст возможность получить экспериментальное значение T , соответствующее пересечению кривых $A(T)$ для чистого и примесного кристаллов, так что интересно было бы расширение температурного (и частотного) интервала в экспериментах.

В заключение пользуюсь случаем выразить глубокую благодарность Б. Я. Мойжесу за полезные обсуждения полученных результатов.

ЛИТЕРАТУРА

1. В. В. Леманов, А. В. Петров. Влияние примесей на затухание гиперзвуковых волн в кристаллах. Письма ЖЭТФ, 1970, 12, 11, 515—518.
2. В. В. Леманов, Г. А. Смоленский. Гиперзвуковые волны в кристаллах. Успехи физ. наук, 1972, 108, 3, 465—501.
3. У. Мэзон. Влияние примесей и фононных процессов на затухание ультразвука. Физическая акустика, т. 3Б. М., «Мир», 1968.

4. K. R. Keller. Ultrasonic Attenuation in Ge—Si Alloys. J. Appl. Phys., 1967, 38, 9, 3777—3780.
5. T. M. Fitzgerald, B. B. Chick, R. Truell. Use of the interaction of thermal and ultrasonic waves to study radiation-induced defects of quartz. J. Appl. Phys., 1964, 35, 5, 1639—1640.
6. H. J. Maris. Ultrasonic attenuation in dirty dielectric crystals. Phys. Rev., 1968, 175, 1077—1081.
7. Л. Э. Гуревич, Б. И. Шкловский. Поглощение ультразвука в диэлектрических кристаллах с большой концентрацией примеси. ЖЭТФ, 1967, 53, 5, 1726—1734.
8. Ю. А. Логачев, Б. Я. Мойжес. Поглощение звука в диэлектриках при любых $\Omega\tau$. Физ. тв. тела, 1973, 15, 10, 2888—2894.
9. А. И. Ахиезер. Поглощение звука в диэлектриках при $\Omega\tau \ll 1$. ЖЭТФ, 1938, 8, 11, 1318—1326.
10. R. D. McCammon, G. K. White. Thermal expansion of germanium. Phys. Rev. Lett., 1963, 10, 6, 234—236.
11. H. Jex. Neutron Inelasr. Scatt. Proc. Symp. Grenoble, 1972, p. 29, Vienna, 1972.

Поступила
7 июня 1973 г.