

Акустооптические и упругие свойства слоистых кристаллов $KY(MoO_4)_2$

© Л.А. Кулакова

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,
194021 Санкт-Петербург, Россия

E-mail: L.Kulakova@shuvpop.ioffe.rssi.ru

(Поступила в Редакцию 17 мая 1999 г.)

Получены данные об акустических (поглощение и скорость звука), оптических (коэффициенты преломления и оптическое поглощение) и фотоупругих (коэффициенты акустооптического качества, фотоупругие постоянные) свойствах кристаллов $KY(MoO_4)_2$. Показано, что анизотропия сил связи приводит не только к существенной анизотропии акустических и фотоупругих свойств, но и обуславливает аномально высокую упругую нелинейность в направлении оси Y , перпендикулярной плоскостям спайности.

Слоистые кристаллы, обладая ярко выраженной анизотропией механической прочности, являются удобным объектом для изучения влияния анизотропии сил связи на физические свойства твердых тел. В ряде работ [1] было показано, что это влияние на тепловые, оптические, электрические и другие свойства столь велико, что позволяет говорить о двумерности строения таких кристаллов.

Влияние анизотропии сил связи на фотоупругий эффект было подробно изучено на примере гексагональных слоистых кристаллов GaSe [2]. Авторами [2] было показано, что слоистость структуры приводит к двумеризации экситонной волновой функции. Однако данные об особенностях фотоупругих свойств других слоистых кристаллов носят весьма фрагментарный характер.

Акустические свойства различных слоистых кристаллов изучались ранее импульсным эхо-методом [3]. В силу ограничений, связанных с интегральным характером такого метода (что особенно существенно для слоистых кристаллов с возможной дефектностью их структуры), полученные результаты нуждаются в уточнении акустооптической методикой, позволяющей проводить локальные измерения.

Данная работа посвящена изучению фотоупругих и акустических свойств слоистых кристаллов $KY(MoO_4)_2$. Кристаллы имеют ромбоэдрическую симметрию (D_{2h}) и обладают совершенной спайностью в плоскости XZ и менее совершенной спайностью в плоскости XY [4]. Обладая высокой оптической прозрачностью в видимой области спектра, эти кристаллы являются прекрасным объектом для изучения особенностей акустического поглощения в слоистых кристаллах акустооптическим методом. Нами получены данные об оптических свойствах, значениях акустооптических эффективностей и компонент фотоупругого тензора этих кристаллов. Изучены особенности распространения акустических волн. Акустооптическим методом измерено поглощение продольных и поперечных звуковых волн в диапазоне частот 300–1600 MHz, получены данные о значениях скорости различных звуковых волн.

1. Методика измерений

В работе были использованы монокристаллы, выращенные в Институте неорганической химии Сибирского отделения РАН. Оптически однородные образцы размером $4 \times 4 \times 10$ mm ориентировались вдоль кристаллографических осей. Грани, перпендикулярные слоям, обрабатывались тонкой шлифовкой с последующей оптической полировкой, параллельные слоям — отслаиванием разрушенного слоя. Звук возбуждался резонансными пьезопреобразователями из ниобата лития, приклеиваемыми к соответствующей грани образца посредством склейки Nonaq Stopcock. Использовались как основная частота преобразователя ($f = 30$ MHz), так и его высшие гармоники.

В акустооптических измерениях использовался метод брэгговской дифракции света на акустической волне. Для измерений акустооптической добротности M_2 использовался традиционный метод Диксона [5], в качестве источника света — He-Ne лазер ($\lambda = 0.63 \mu\text{m}$), как эталон — монокристаллы GaP.

Значения абсолютных величин коэффициентов преломления получены нами (с точностью $\sim 10^{-2}$) из измерений величины смещения луча лазера из-за преломления при прохождении (угол падения 45°) плоскопараллельного образца $KY(MoO_4)_2$ соответствующей геометрии.

Скорость звуковых волн вычислялась с точностью до 10^{-3} из данных измерения времени между соседними эхо-импульсами методом совмещения СВЧ заполнения этих импульсов.

2. Результаты и их обсуждение

Известно, что эффективность брэгговской дифракции света на ультразвуковых волнах определяется параметром акустооптической добротности M_2

$$I_1 = 1/2 I_0 M_2 P (\pi d / (\lambda \cos \theta_i))^2, \quad (1)$$

$$(M_2)_{ik} = n_i^6 p_{ik}^2 / (\rho V_k^3), \quad (2)$$

где I_1 , I_0 — интенсивности дифрагированного и падающего света соответственно; P — интенсивность звука;

Значения параметров акустооптической добротности $(M_2)_{ik}$, фотоупругих модулей (p_{ik}) , коэффициентов преломления (n_i) , коэффициентов оптического поглощения β_i и скоростей звука (V_k) ; $\rho = 3.9 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$, $\lambda = 0.63 \text{ } \mu\text{m}$

| ik | $M_{ik}, 10^{-18} \text{ s}^3 \text{ g}^{-1}$ | p_{ik} | n_i | $\beta_i, \text{ cm}^{-3}$ | $V_k, 10^5 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$ |
|------|---|----------|--------|----------------------------|--|
| 11 | 0.5 | 0.092 | 1.8342 | 0.015 | 5.08 |
| 12 | 21 | 0.253 | | | 2.87 |
| 13 | 1.93 | 0.108 | | | 3.6 |
| 21 | 4.15 | 0.242 | | | |
| 22 | 28 | 0.267 | 1.7658 | 0.1 | |
| 33 | 3.86 | 0.21 | 1.7474 | 0.1 | |
| 44 | | | | | 1.86 |
| 55 | | | | | 2.47 |
| 66 | 36 | 0.12 | | | 1.5 |

λ — длина волны света; d — ширина акустического пучка; θ_i — угол падения; n_i — коэффициент преломления; p_{ik} — компонента фотоупругого тензора; ρ — плотность кристалла; V_k — скорость звуковой волны; $i, k = 1-6$; i — индекс поляризации света, k — индекс деформации в матричном представлении. Поскольку M_2 включает в себя анизотропию как упругих, так и оптических свойств, анизотропия этого параметра наиболее полно отражает влияние анизотропии сил связи на фотоупругий эффект.

Результаты измерений параметра акустооптической добротности, представленные в таблице, показывают, что наибольший фотоупругий эффект, вызываемый продольной деформацией, наблюдается в направлении $Y(M_2)_{22}$, т.е. поперек основных плоскостей спайности, как и в кристаллах GaSe [2]. Однако наибольшая акустооптическая эффективность $(M_2)_{66}$ наблюдается для деформации сдвига (S_6) слоев относительно друг друга. Следует отметить определенную уникальность этого результата: до сих пор нам не были известны материалы, в которых бы эффективность дифракции света на сдвиговых волнах была бы выше, чем на продольных. При исследовании фотоупругого эффекта в слоистых кристаллах GaSe [2] дифракцию света на соответствующих звуковых волнах (деформации S_4 и S_5) наблюдать не удалось. Из-за большой разницы ($n_o - n_e \sim 0.3$) коэффициентов преломления в этих кристаллах дифракция возможна в области высоких частот звука ($f \sim 1.5 \text{ GHz}$), а значит, и больших ($\sim 70^\circ$) углов дифракции, что существенно затрудняет наблюдение эффекта.

Исследование дифракции света на сдвиговых (S_6) волнах в кристаллах $\text{KY}(\text{MoO}_4)_2$ важно не только с точки зрения обнаружения высокой акустооптической эффективности. Оно позволило нам определить с достаточно высокой степенью точности величину разности коэффициентов преломления $\Delta n_{12} = 0.0683$ ($\Delta n_{12} = n_x - n_y$), $\Delta n_{13} = 0.0867$ ($\Delta n_{13} = n_x - n_z$) и $\Delta n_{23} = 0.0184$ ($\Delta n_{23} = n_x - n_z$). Для этого мы использовали полученные нами экспериментальные данные о геометрии дифракции света на поперечном звуке S_6 (рис. 1) и

известные [6] соотношения для углов (вне образца) падения θ_i , дифракции θ_d и рассеяния θ_s в условиях анизотропной брэгговской дифракции

$$\sin \theta_i = \lambda f [1 + n \Delta n V^2 / (f^2 \lambda^2)] / 2V,$$

$$\sin \theta_d = \lambda f [1 - n \Delta n V^2 / (f^2 \lambda^2)] / 2V,$$

$$\theta_s = \theta_i + \theta_d, \quad (3)$$

где $n = (n_i + n_d)/2$, $\Delta n = (n_i - n_d)$.

В наших измерениях $n_i = n_2$, $n_d = F(n_1, n_3)$. При $\theta_i = 0$ $n_d = n_1$ и, как следует из (3), $\Delta n = f_0^2 / 2nV^2$. Измерив f_0 и зная величину n , можно вычислить значение

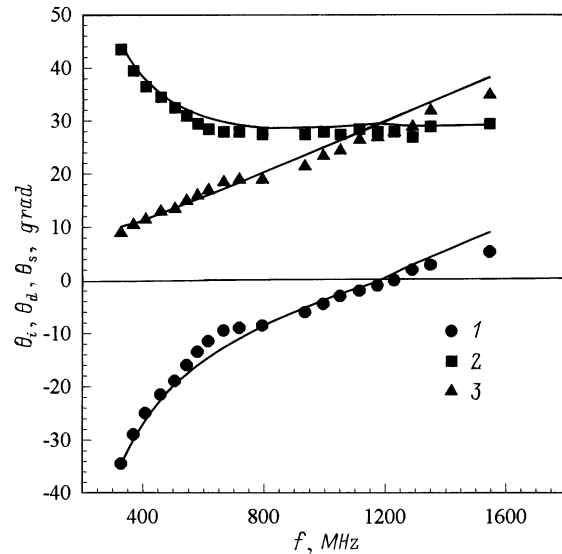


Рис. 1. Геометрия дифракции света на сдвиговой звуковой волне (S_6); 1 — θ_i , 2 — θ_d , 3 — θ_s .

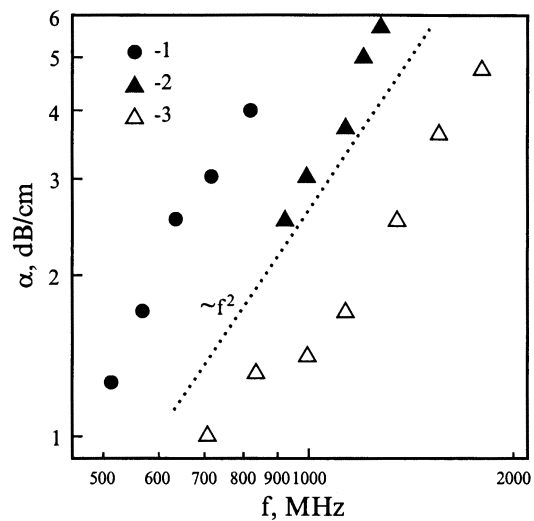


Рис. 2. Частотная зависимость коэффициента поглощения продольных (1 — S_2 , 3 — S_1) и поперечных (2 — S_6) звуковых волн.

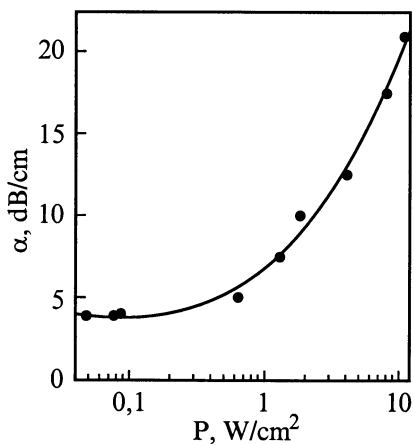


Рис. 3. Зависимость коэффициента поглощения продольных волн (S_2 , $f = 800$ МГц) от входной интенсивности.

Δn_{21} . Осуществляя подгонку расчетных и экспериментальных данных (рис. 1) при $\theta_i \neq 0$, можно вычислить и значение Δn_{23} .

Значение $n = 1.8$, использованное при вычислениях Δn , получено нами из измерений смещения луча лазера из-за преломления при прохождении (угол падения 45°) плоскопараллельного образца $KY(MoO_4)_2$ соответствующей геометрии. Окончательные значения n_i представлены в таблице.

Полученные нами данные о скорости звука (см. таблицу) показывают, что упругие свойства отчетливо коррелируют с анизотропией сил связи: чем больше силы связи, тем выше скорость звука.

Используя значения определенных нами акустических и оптических параметров (см. таблицу) и приведенного выше соотношения (2) для $(M_2)_{ik}$, мы вычислили величины компонент p_{ik} фотоупругого тензора. Анизотропия тензора фотоупругости, как видно из этих данных (см. таблицу), так же, как и упругие свойства, однозначно связана с анизотропией сил связи, однако качественно носит прямо противоположный характер: чем слабее связь, тем выше значения p_{ik} , т. е. тем сильнее изменяется поляризуемость кристалла под влиянием деформации.

Результаты измерений поглощения звука в исследуемых кристаллах в интервале частот 300–1800 МГц представлены на рис. 2. Частотные зависимости для всех исследованных случаев имеют вид, близкий к квадратичному, характерному для ахизеровского механизма решеточного поглощения в кристаллах. Соотношение коэффициентов поглощения для различных типов волн прямым образом отражает соотношение сил связи: наибольшее поглощение наблюдается в направлении наиболее слабых связей — Y -направление. Однако обращает на себя внимание относительно небольшая величина поглощения для всех типов волн. Особенно это удивительно как для продольных, так и для сдвиговых волн, распространяющихся в направлении оси Y (перпендикулярно плоскости основных слоев). Из-за слабой связи между слоями можно было бы ожидать более высокого значения вязкости, а значит, и поглощения упругих волн в этих кристаллах.

Особо следует остановиться на результатах исследования поглощения продольного звука (S_2), распространяющегося поперек слоев. Данные о поглощении

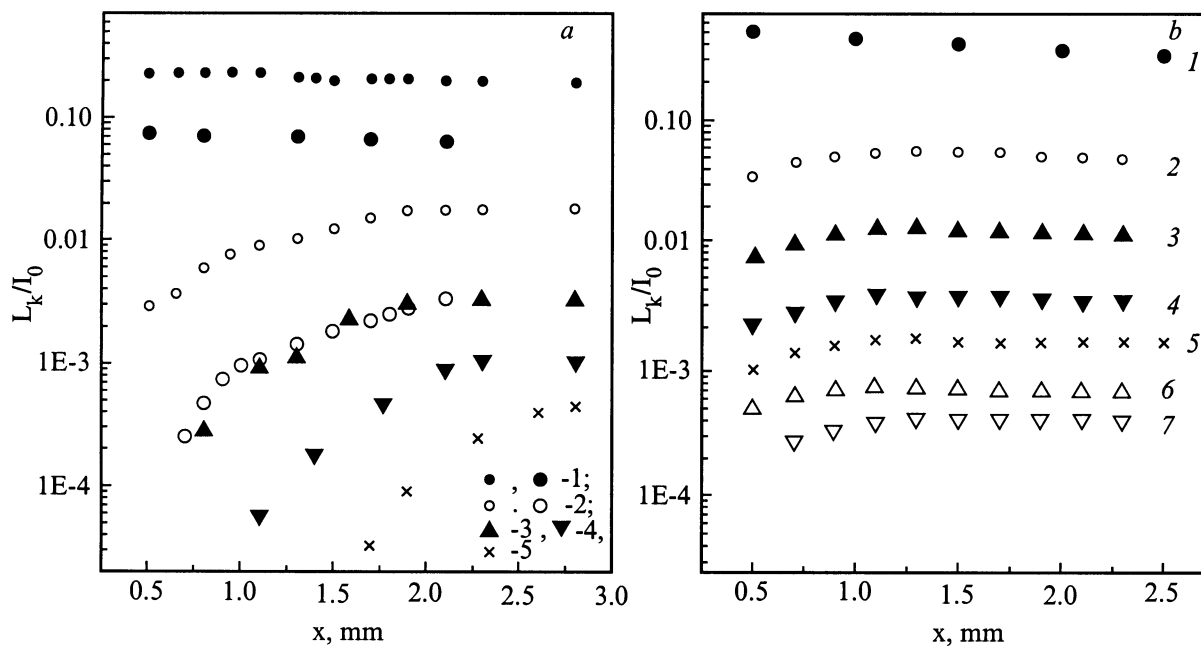


Рис. 4. Пространственное развитие спектра звукового потока (вдоль Y) при различных интенсивностях продольной звуковой волны на входе ($I_k/I_0 = 0.1$ соответствует интенсивности звука $P = 5.3$ W/cm^2); 1–7 — номера соответствующих звуковых гармоник.

для этой волны, приведенные на рис. 2, получены в условиях очень малой интенсивности ($P < 0.1 \text{ W/cm}^2$) звука. При увеличении интенсивности поглощение начинает расти, мы видим резкую зависимость коэффициента поглощения от интенсивности звука (рис. 3), а в спектре акустического потока появляются и нарастают высшие гармоники (рис. 4). Картину пространственного развития спектра акустического потока мы приводим для более низкой частоты ($f = 334 \text{ MHz}$), поскольку с понижением частоты возможно наблюдение развития большего количества гармоник. При наблюдаемых уровнях дифракции в первом порядке возможны нелинейные акустооптические эффекты. Они могут приводить к перекачке интенсивности дифрагированного света в высшие порядки. Однако это должно приводить к обратному пространственному эффекту, и измеряемая величина поглощения должна уменьшаться при увеличении интенсивности звука. Поэтому очевидно, что при большой интенсивности звука в процессе его распространения происходит перекачка энергии в высшие гармоники из-за упругой нелинейности.

Для вычисления нелинейного коэффициента Γ [7] ($u_2 = 8\Gamma u_1^2 \Delta x k_1^2$, где u_1 , u_2 — амплитуда смещения соответствующей компоненты, k_1 — волновое число основной частоты) нами измерено развитие второй гармоники S_2 при невысоком уровне входного сигнала (рис. 4, а), что позволяет наблюдать участок линейного нарастания ее амплитуды. Из этого рисунка видно, что в кристаллах $\text{KY}(\text{MoO}_4)_2$ на линейном участке интенсивность второй гармоники возрастает на порядок на расстоянии менее 1 mm при интенсивности звука $P \approx 4 \text{ W/cm}^2$. Вычисления с использованием этих данных показали, что в Y -направлении упругая нелинейность аномально велика: $\Gamma \approx 40$. Такое значение нелинейного коэффициента, по существующим [8] данным, не наблюдалось ни в одном из известных материалов.

Таким образом, в работе впервые получены данные об оптических, фотоупругих и акустических свойствах кристаллов $\text{KY}(\text{MoO}_4)_2$. Установлена их прямая корреляция с анизотропией сил связи. Из данных о геометрии анизотропной дифракции поперечных волн с высокой (10^{-4}) степенью точности вычислены значения разности основных компонент коэффициентов преломления.

Обнаружено, что в направлении, перпендикулярном плоскости слоя, распространение продольных волн носит существенно нелинейный характер, коэффициент поглощения соответствующих продольных волн в значительной степени зависит от интенсивности звука; линейный режим реализуется лишь при интенсивностях $< 0.1 \text{ W/cm}^2$. Значение нелинейного коэффициента имеет самую большую величину ($\Gamma \approx 40$) среди известных материалов.

Автор выражает благодарность А.А. Павлюку за предоставленные монокристаллы $\text{KY}(\text{MoO}_4)_2$, Ю.В. Илизавскому — за полезные обсуждения.

Работа поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (гранты № 95-02-04093-а, № 98-02-18305).

Список литературы

- [1] Г.Л. Беленький, В.Б. Стопачинский. УФН **140**, 2, 233 (1983).
- [2] Н.С. Аверкиев, Ю.В. Илизавский, Л.А. Кулакова. ФТТ **38**, 12, 3556 (1996); ФТТ **38**, 12, 3570 (1996).
- [3] Ю.В. Илизавский, В.Л. Окулов, С.В. Ордин. Письма ЖТФ **12**, 6, 377 (1986).
- [4] Р.Ф. Клевцов, С.В. Борисов. АН СССР **177**, 6, 1333 (1967).
- [5] W. Dixon. IEEE Trans. **QE-3**, 87 (1967).
- [6] А.М. Дьяконов, Ю.В. Илизавский, Л.А. Кулакова. ФТТ **14**, 1, 95 (1972).
- [7] Л.Н. Зарембо, В.А. Красильников. УФН **102**, 4, 549 (1970).
- [8] О.Б. Гусев, В.В. Клуздин. Акустооптические измерения. Изд-во ЛГУ, Л. (1987). С. 52.