

Zygmunt KLESZCZEWSKI

Maciej TOMASZEWSKI

BADANIE NIELINIOWYCH EFEKTÓW SPRĘŻYSTYCH
W CIAŁACH STAŁYCH METODAMI AKUSTOOPTYCZNYMI

Streszczenie. W pracy omówiono krótko nieliniowe efekty sprężyste powstające przy propagacji fal akustycznych w kryształach, a uwarunkowane anharmonicznością sił międzycząsteczkowych. Przedstawiono możliwość wykorzystania dyfrakcji światła na falach akustycznych do badania tych efektów. Wykorzystując dyfrakcję Bragga dokonano pomiarów stałych sprężenia fonon-fonon w następujących kryształach: $\text{Bi}_{12}\text{GeO}_{20}$, $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$, TiO_2 i w topionym kwarcu oraz przedyskutowano uzyskane rezultaty.

1. Wstęp

Propagacja fal akustycznych o znacznym natężeniu powoduje wystąpienie w kryształach różnych zjawisk nieliniowych. Wśród nich należy wymienić przede wszystkim nieliniowe efekty sprężyste. Są one uwarunkowane w głównej mierze anharmonicznością sił międzycząsteczkowych. Anharmoniczność ta powoduje wystąpienie oddziaływań fonon-fonon, co z kolei jest jedną z przyczyn absorpcji fal akustycznych w kryształach.

Celem niniejszej pracy jest krótkie omówienie nieliniowych efektów sprężystych uwarunkowanych anharmonicznością sił międzycząsteczkowych, przedstawienie możliwości wykorzystania dyfrakcji światła na falach do badania tych zjawisk, zaprezentowanie i przedyskutowanie uzyskanych rezultatów eksperymentalnych.

2. Podstawy teoretyczne

Zjawiska związane z nieliniowymi efektami sprężystymi a spowodowane anharmonicznością sił międzycząsteczkowych mogą być opisane przy pomocy modułów sprężystości wyższych rzędów. Jeśli w wyrażeniu na energię sprężystą uwzględnić człony trzeciego stopnia względem deformacji, to ma ono postać [6]

$$W = \frac{1}{2} C_{ijkl} S_{ij} S_{kl} + \frac{1}{6} C_{ijkl} S_{ij} S_{kl} S_{mn} \quad (1)$$

gdzie:

C_{ijkl}, C_{ijklmn} - oznaczają stałe sprężyste drugiego i trzeciego rzędu,
 S_{ij} - tensor odkształcenia.

W tensorze odkształcenia uwzględniamy człony kwadratowe względem przemieszczenia

$$S_{ij} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} + \frac{\partial u_i}{\partial x_1} \frac{\partial u_j}{\partial x_1} \right) \quad (2)$$

Korzystając z równań (1) i (2) równanie ruchu można w tym przypadku zapisać w postaci [5]

$$\rho \ddot{u}_i = C_{ijkl} \frac{\partial^2 u_k}{\partial x_j \partial x_k} + A_{ijklpq} \frac{\partial^2 u_k}{\partial x_j \partial x_l} - \frac{1}{2} \eta_{iklm} \frac{\partial}{\partial x_k} \frac{\partial}{\partial t} \frac{\partial u_l}{\partial x_m} \quad (3)$$

gdzie:

$$A_{ijklmn} = C_{ijql} \delta_{kp} + C_{jlpq} \delta_{ik} + C_{jkql} \delta_{ip} + C_{ijklpq}$$

ρ - gęstość ośrodka,
 δ_{ik} - delta Kroneckera,
 η_{iklm} - składowe tensora lepkości.

Równanie powyższe opisuje nieliniowe efekty sprężyste powstające przy propagacji fal akustycznych w kryształach.

Z równania (3) można znaleźć natężenie drugiej harmonicznej w funkcji odległości od miejsca wygenerowania fali akustycznej o częstotliwości f . Natężenie to dane jest wyrażeniem [2]

$$P_{2f}(x) = \frac{\Gamma^2 q_1^2 p_f^2(o)}{8\rho v^3} \left(\frac{e^{-2\alpha_1 x}}{\alpha_2} - \frac{e^{-\alpha_2 x}}{2\alpha_1} \right)^2$$

gdzie:

$P_{2f}(x)$ - natężenie drugiej harmonicznej w odległości x od przetwornika,
 $P_f(o)$ - natężenie fali o częstotliwości f przy przetworniku,
 q_1 - długość wektora falowego fali o częstotliwości f ,
 α_1, α_2 - współczynniki tłumienia fali akustycznej o częstotliwości f i $2f$,
 Γ - stała sprzężenia fonon-fonon.

Z wyrażenia (4) wynika, że natężenie drugiej harmonicznej w funkcji odległości od przetwornika początkowo wzrasta, osiąga maksimum a następnie maleje. Jeśli przyjąć, że $\alpha_2 = 4\alpha_1$, co najczęściej ma miejsce, to

maksimum natężenia drugiej harmonicznej występuje dla $x = i_0 = \frac{1n2}{\sigma}$. Należy zwrócić także uwagę na kwadratową zależność P_{2f} od P_f . Wspomniana już wcześniej stała sprężenia fonon-fonon ma w ogólnym przypadku postać [5]

$$\Gamma = \frac{A_{ijklpq} \gamma_j^p \gamma_l^q \gamma_1^r \gamma_i^s \gamma_k^t \gamma_k^u \gamma_k^v}{C_{ijkl} \gamma_j^p \gamma_l^q \gamma_1^r \gamma_i^s \gamma_k^t} \quad (5)$$

gdzie:

γ_j^p, γ_l^q - składowe wektorów jednostkowych odpowiednie w kierunku polaryzacji i propagacji fali akustycznej.

Stałe Γ dla danego kierunku propagacji i polaryzacji fali akustycznej mogą być wyznaczone w oparciu o wyrażenie (4) poprzez pomiar natężenia drugiej harmonicznej. Znajomość stałych sprężenia fonon-fonon pozwala z kolei wyznaczyć stałe sprężyste trzeciego rzędu. Podkreślimy, że stałe wyraża się w bardzo złożonej formie poprzez stałe sprężyste trzeciego rzędu. Okazuje się ponadto [6], że nie w każdym przypadku propagacja fali o częstotliwości f wywołuje generację harmonicznej. Z powyższego wynika, że wyznaczenie wszystkich stałych sprężystych trzeciego rzędu z pomiarów stałej Γ jest eksperymentalnie sprawą bardzo trudną. Dlatego też stałe sprężyste trzeciego rzędu wyznacza się też innymi metodami, np. poprzez pomiar prędkości propagacji fali akustycznej w zależności od przyłożonego od kryształu ciśnienia [1].

3. Wykorzystanie metod akustooptycznych do badania nieliniowych efektów sprężystych

Do pomiaru stałej sprężenia fonon-fonon bardzo użyteczna jest dyfrakcja światła na falach akustycznych.

Wykorzystuje się przy tym fakt, że kąt dyfrakcji i natężenia ugiętego światła zależą od częstotliwości i natężenie fali akustycznej. W przypadku dyfrakcji Bragga, która będzie zastosowana w niniejszej pracy wielkości te, tzn. kąt dyfrakcji i natężenie ugiętego światła wyrażają się wzorami [3]

$$\sin \theta = \frac{\lambda_0 f}{2nV} \quad (6a)$$

$$\frac{I}{I_0} = \frac{\pi^2}{2\lambda_0^2 \cos^2 \theta} \left(\frac{n^6 P^2}{\rho v^3} \right) P_f L^2 \quad (6b)$$

gdzie:

θ - kąt dyfrakcji,

λ_0 - długość fali świetlnej w próżni,

- f, v - odpowiednio częstotliwość i prędkość propagacji fali akustycznej,
 n, q, p - odpowiednio współczynnik załamania światła, gęstość i efektywna stała fotosprężysta ośrodka,
 I/I_0 - stosunek natężenia światła ugiętego do padającego,
 P_f - natężenie fali akustycznej,
 L - długość drogi oddziaływania światła i fali akustycznej.

Z wyrażen tych wynika, że kąt dyfrakcji jest proporcjonalny do częstotliwości fali akustycznej, a natężenie ugiętego światła - proporcjonalne do natężenia fali akustycznej. Jeśli więc w kryształach występuje generacja drugiej harmonicznej, to następuje ugięcie światła pod kątem 2θ . Dokonując pomiaru $I(\theta)$ i $I(2\theta)$ wyznaczamy P_{2f}/P_f , a z pomiaru $I(\theta)/I_0$ - natężenie fali akustycznej (wzór 7b). Pozwala to znaleźć z wyrażenia (4) stałą sprzężenia fonon-fonon. Pomiar natężenia drugiej harmonicznej można dokonywać w funkcji odległości od przetwornika, a uzyskane dane eksperymentalne porównać z wyrażeniem (4). Ma to bardzo istotne znaczenie gdyż przyczyny powstawania w kryształach fali o częstotliwości $2f$ mogą być bardzo różne [6]. Jednak tylko w przypadku, gdy jest ona spowodowana anharmoniczną siłą międzycząsteczkową, natężenie jej może być opisane wzorem (4). Można więc metodą akustooptyczną zbadać doświadczalnie jakie są przyczyny występowania nieliniowych efektów sprzężystych.

Wykorzystując dyfrakcję Bragga można także badać zależność natężenia drugiej harmonicznej od natężenia fali podstawowej. Duża czułość omawianej metody pozwala stosunkowo dokładnie wyznaczyć natężenie progowe fali podstawowej, przy którym występuje generacja drugiej harmonicznej.

Dokonując pomiaru natężenia ugiętego światła należy pamiętać, że pod kątem 2θ mogą pojawiać się również prążki dyfrakcyjne drugiego rzędu, zwłaszcza przy niższych częstotliwościach. Otóż jak wynika z obliczeń [4], stosunek natężenia światła w prążki drugiego rzędu (ugiętego na fali podstawowej) do natężenia światła ugiętego na fali harmonicznej dany jest wzorem

$$\tau = \left(\frac{n^4 v^3 P}{4x_0^2 f^2 x \Gamma} \right)^2, \quad (7)$$

gdzie:

x - odległość od przetwornika; pozostałe oznaczenia jak poprzednio.

Z powyższego wyrażenia wynika, że im częstotliwość fali akustycznej jest wyższa, tym wartość τ jest mniejsza. Z tego powodu wykorzystanie dyfrakcji Bragga jest korzystniejsze niż dyfrakcji Ramana-Natha, gdyż w tym pierwszym przypadku prostsza jest analiza danych eksperymentalnych. Zwrócić jednak trzeba uwagę na istotne ograniczenie dyfrakcji Bragga. Otóż przy wykorzystaniu tej dyfrakcji można wyznaczyć tylko bezwzględną wartość stałej Γ . Analiza teoretyczna dyfrakcji Ramana-Natha wykazuje [4],

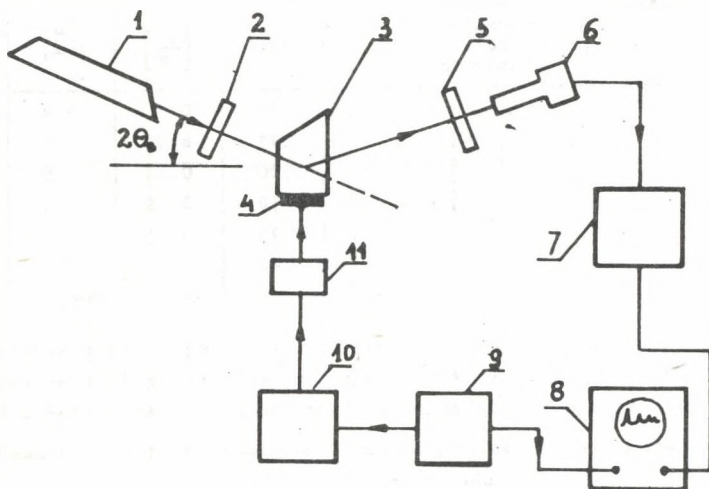
że w tym przypadku wyznaczyć można zarówno wartość jak i znak stałej sprzężenia fonon-fonon.

Jedną z ważnych zalet metod akustooptycznych do badania efektów nieliniowych jest możliwość sondowania pola akustycznego wiązką laserową. Pozwala to doświadczalnie badać rozkład natężenia pola akustycznego fali o częstotliwości harmonicznej.

Z powyższego wynika, że metody akustyczne mogą być z powodzeniem wykorzystane do badania nieliniowych efektów sprężystych w kryształach.

4. Układ eksperymentalny. Uzyskane rezultaty i ich omówienie

Do wyznaczania stałych sprzężenia fonon-fonon wykorzystano w niniejszej pracy dyfrakcję Bragga światła na fali akustycznej. Układ pomiarowy przedstawiono na rys. 1. Źródłem światła był laser He-Ne o mocy 10 mW.



Rys. 1. Schemat układu pomiarowego do badania sprężystych efektów nieliniowych metodą dyfrakcji Bragga

1 - laser, 2 - polaryzator, 3 - badany kryształ, 4 - przetwornik piezoelektryczny, 5 - analizator polaryzacyjny, 6 - fotopowielacz, 7 - nanowoltomierz selektywny, 8 - oscyloskop, 9 - generator modulujący, 10 - generator wysokiej częstotliwości, 11 - miernik napięcia

Światło laserowe padało pod kątem θ lub 2θ na badany kryształ. Światło ugięte rejestrowano fotopowielaczem, z którego sygnał był podawany na nanowoltomierz selektywny a następnie na oscyloskop. Źródłem fali akustycznej były przetworniki piezoelektryczne z LiNbO_3 (ciężkie 36°Y) klejone do badanych kryształów. Przetworniki miały grubość 6-8 μm , co daje częs-

totliwość rezonansową 400–600 MHz. Powierzchnie czynne miały kształt prostokątów średnio o wymiarach $0,8 \times 3 \text{ mm}^2$. Tak niewielkie powierzchnie przetworników pozwoliły uzyskać stosunkowo duże natężenie pól akustycznych (do $10 \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$) przy mocach elektrycznych nie większych niż 2 W.

Sygnal z generatora wysokiej częstotliwości, którym pobudzano przetwornik był modulowany impulsami prostokątnymi o czasie trwania 0,1–0,3 μs i częstotliwości powtarzania 1 kHz. Typowe wymiary badanych kryształów wynosiły $8 \times 8 \times 40 \text{ mm}^3$. Aby zapobiec dyfrakcji światła na fali odbitej, a także powstawaniu stojącej fali akustycznej, powierzchnia czołowa kryształu przeciwna do przetwornika była w każdym przypadku zeszlifowywana pod kątem kilku stopni w stosunku do czoła fali akustycznej.

Tabela 1

Wykaz badanych substancji
oraz charakterystycznych wielkości
występujących przy pomiarze stałych sprzężenia fonon-fonon

Substancja	Kierunek propagacji fali akustycznej	f [MHz]	α_f [$\frac{1}{\text{cm}}$]	l_0 [cm]	τ
$\text{Bi}_{12}\text{GeO}_{20}$	[100]	500	0,1	3,4	0,002
	[110]	395	0,09	3,8	
	[111]	500	0,12	2,8	
$\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$	[100]	450	0,09	3,8	0,002
TiO_2	[001]	595	0,03	11,5	0,061
SiO_2 topiony	-	490	0,3	1,1	0,045

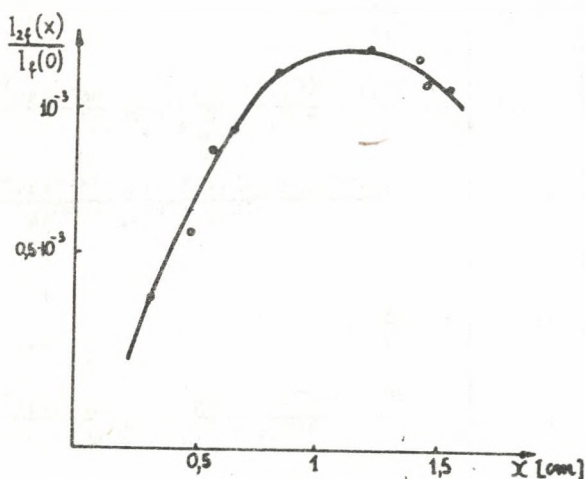
W tabeli 1 przedstawiono badane kryształy, podając jednocześnie kierunki krystalograficzne i częstotliwości, przy których przeprowadzono pomiar wartości współczynników tłumienia fali akustycznej oraz wartości $l_0 = \frac{\ln 2}{2\alpha_f}$. W ostatniej kolumnie tej tabeli podano oszacowane wartości parametru (wzór 8) dla $x = 1 \text{ cm}$ i przyjmując $\Gamma = 1$.

Z przytoczonych wartości τ wynika, że przy rozpatrywanych częstotliwościach światło ugięte pod kątem 2θ jest uwarunkowane głównie falą akustyczną o częstotliwości harmonicznej.

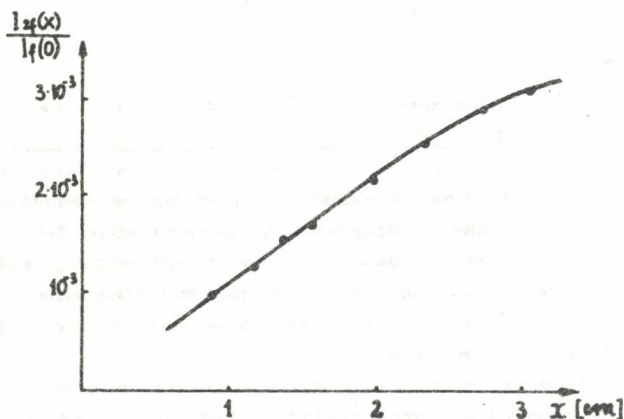
Pomiary przeprowadzono w ten sposób, że dokonywano pomiaru natężenia ugiętego światła pod kątem 2θ w funkcji odległości od przetwornika. Następnie mierzono natężenie światła ugiętego pod kątem θ w pobliżu przetwornika oraz natężenie światła padającego.

Pomiar $I(2f)/I(f)$ pozwolił wyznaczyć P_{2f}/P_f , a pomiar $I(f)/I_0$ - moc i natężenie fali akustycznej fali podstawowej (wg wyrażenia 7b). Niezależnie dokonywano pomiaru wymiarów pola akustycznego metodą sondowania wiązką laserową oraz stałych materiałowych n , p i v , potrzebnych do wyzna-

czania natężenia fali akustycznej ze wzoru (7b). Ze znajomości $P_{2f}/P_f(0)$ i $P_f(0)$ wyliczono wg wyrażenia (4) stałą sprzężenia fonon-fonon. Wyniki pomiarów i obliczeń przedstawiono na rys. 2-4 i w tabeli 2.



Rys. 2. Zależność $\frac{I_{2f}(x)}{I_f(0)}$ od odległości od przetwornika w topionym kwarcu, $f = 490$ MHz



Rys. 3. Zależność $\frac{I_{2f}(x)}{I_f(0)}$ od odległości od przetwornika w rutyli
Kierunek propagacji - [001], $f = 595$ MHz

Tabela 2

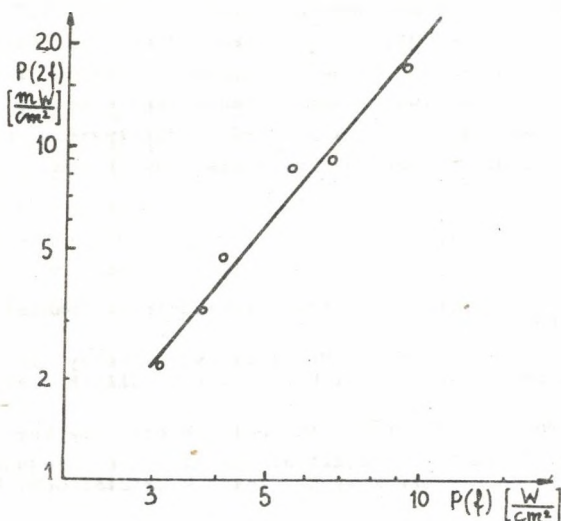
Zmierzone wartości stałej sprzężenia fonon-fonon

Substancja	Kierunek	Γ
$\text{Bi}_{12}\text{GeO}_{20}$	[100]	$3 + \frac{C_{111}}{C_{11}} = 6 \pm 3$
	[110]	$3 + \frac{2C_{111} + 3(C_{111} + C_{113}) + 12(C_{166} + C_{155})}{4(C_{11} + C_{12} + 2C_{44})} = 7 \pm 3$
	[111]	$3 + \frac{C_{111} + 2C_{123} + 3(C_{112} + C_{113}) + 12(C_{144} + C_{166}) + 16C_{156}}{3(C_{11} + 2C_{12} + 4C_{44})} = 8 \pm 4$
$\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$	[100]	$3 + \frac{C_{111}}{C_{11}} = 7 \pm 3$
	[110]	$3 + \frac{2C_{111} + 3(C_{111} + C_{113}) + 12(C_{166} + C_{155})}{4(C_{11} + C_{12} + 2C_{44})} = 7 \pm 2$
	[111]	$3 + \frac{C_{111} + 2C_{123} + 3(C_{112} + C_{113}) + 12(C_{144} + C_{166}) + 16C_{156}}{3(C_{11} + C_{12} + 4C_{44})} = 9 \pm 3$
TiO_2	[001]	$3 + \frac{C_{333}}{C_{33}} = 4 \pm 1$
Kwarc topiony	-	$3 + \frac{C_{111}}{C_{11}} = 11 \pm 3$

Na rys. 2-3 przedstawiono przykładowo zmierzoną zależność $I(2f)/I(f)$, a więc $P_{2f}/P_1(0)$ w funkcji odległości od przetwornika dla TiO_2 i topionego kwarcu. Warto zwrócić uwagę na charakterystyczny przebieg tej zależności w topionym kwarcu. Ze względu na znaczne tłumienie fali akustycznej przy badanej częstotliwości, maksimum jest osiągnięte dla niewielkich odległości od przetwornika.

Tabela 2 zawiera wyliczone stałe sprzężenia fonon-fonon. Z wyliczonych wartości Γ nie wyznaczono jednak stałych sprzężonych 3 rzędu, gdyż pomiary dają tylko $|\Gamma|$. Dokładność wyznaczania stałych sprzężenia fonon-fonon jest uwarunkowana głównie dokładnością pomiaru $P_{2f}(x)/P_1(0)$ i $P_1(0)$ i zawiera się w granicach 30-50%.

Uzyskane rezultaty dla LiNbO_3 , kwarcu krystalicznego i topionego są w dobrej zgodności z danymi literaturowymi [6]. W przypadku TiO_2 , $\text{Bi}_{12}\text{GeO}_{20}$



Rys. 4. Zależność P_{2f} od P_f w rutylu, $x = 3$ cm

i $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$ autor nie znalazł prac dotyczących badania efektów nieliniowych w tych kryształach.

Przeprowadzono również pomiary natężenia drugiej harmonicznej w zależności od natężenia fali podstawowej. Przykładowy rezultat tych pomiarów dla TiO_2 przedstawiono na rys. 4. Wynika z nich, że w granicach błędów występuje kwadratowa zależność P_{2f} od P_f . Świadczy to, że rozpatrywane efekty nieliniowe są wywołane głównie anharmonicznością sił międzyatomowych.

Pomiar stałych sprężenia fonon-fonon i stałych sprężystych trzeciego rzędu jest ważnym problemem z punktu widzenia badań podstawowych. Można w ten sposób uzyskiwać informacje o oddziaływaniach fonon-fonon w kryształach. Znajomość stałych sprężystych trzeciego rzędu daje możliwość wyliczenia stałych Grüneisena dla danego kierunku propagacji i polaryzacji fali akustycznej, co z kolei jest niezbędne do teoretycznej interpretacji tłumienia fal akustycznych w kryształach.

5. Podsumowanie

Przeprowadzone pomiary wykazały dużą użyteczność metod akustooptycznych do badania sprężystych efektów nieliniowych. W przeprowadzonych pomiarach wykorzystano jedynie dyfrakcję Bragga. Pełniejsza analiza zjawisk nieliniowych metodami akustooptycznymi wymaga zastosowania także dyfrakcji Ramana-Natha.

Uzyskane rezultaty obarczone są dość dużym błędem, który uwarunkowany jest w głównej mierze niedokładnością pomiaru $I(2f)$ i $I(f)$.

Z danych literaturowych [2, 5, 6] wynika jednak, że stałe sprzężenia fonon-fonon wyznaczane są z podobną dokładnością. Jedną z ważnych zalet dyfrakcji Bragga jest możliwość wykorzystania tego zjawiska do badania oddziaływania fal akustycznych w kryształach. Oddziaływanie fal jest także wykorzystywane do pomiaru stałych sprzężenia fonon-fonon.

LITERATURA

- [1] R.T. Beyer, S.V. Letcher: *Physical Ultrasonics*, Academic Press, New York 1969, 253.
- [2] W.W. Lemanow, G.A. Smoleński: Nielinieijnyje efekty pri rasprastranieni vysokoczastotnych uprugich wołn w kristallach *Ak. Żurnal* 20 1974, 426.
- [3] W.P. Mason: *Physical Acoustic*, Academic, Press, New York 1970, 311.
- [4] B.L. Timan, B.I. Minkow: Projawlenie uprugoj nielineijnosti pri difrakcji swieta na ultrazwukowych wołnach w kristallach. *FTT*, 13 1970, 3070.
- [5] D.C. Wallace: *Sol. St. Phys.*, 25 1970, 302.
- [6] L.K. Zarembo, W.A. Krasilników: Nielinieijnyje jawlenia pri rasprastranieni uprugich wołn w twierdych tielach, *UFN*, 102 1970, 549.

ИССЛЕДОВАНИЕ НЕЛИНЕЙНЫХ УПРУГИХ ЭФФЕКТОВ В ТВЕРДЫХ ТЕЛАХ АКУСТИКО-ОПТИЧЕСКИМИ МЕТОДАМИ

Резюме

В настоящей работе кратко были рассмотрены нелинейные упругие эффекты возникающие во время акустического распространения волн в кристаллах и обусловленные ангармоническими межатомными силами. Была представлена возможность использования дифракции света на акустических волнах для исследования этих эффектов. Используя дифракцию Брэгга были проведены измерения постоянных связи фонон-фонон в следующих кристаллах: $\text{Bi}_{12}\text{GeO}_{20}$, $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$, TiO_2 и в плавленных кварцах, а также были рассмотрены полученные результаты.

ACOUSTOOPTICAL INVESTIGATION OF THE NONLINEAR ELASTIC EFFECTS
IN SOLID STATES

S u m m a r y

In this papdr some nonlinear elastic effects arising under the propagation of acoustic waves in crystals and conditioned by anharmonic interatomic forces have been briefly discussed. The possibility of using the light diffraction on acoustic waves to the investigation of these effects has been presented. Using Bragg diffraction the measurements on phonon-phonon coupling constants have been done in the following crystals:

$\text{Bi}_{12}\text{GeO}_{20}$, $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$, TiO_2 and in melted quartz. The results have been discussed.

Recenzent: Prof. dr Jerzy Ranachowski

Wpłynęło: 27.05.1982 r.