Письма в ЖЭТФ, том 95, вып. 12, с. 699 – 702 © 2012 г. 25 июня

Обнаружение вклада обратного флексоэлектрического эффекта в фоторефрактивный отклик в монокристалле титаната висмута

С. М. Шандаров[1], С. С. Шмаков, Н. И. Буримов, О. С. Сюваева, Ю. Ф. Каргин, В. М. Петров

Томский государственный университет систем управления и радиоэлектроники, 634050 Томск, Россия

Поступила в редакцию 27 апреля 2012 г.

Получены соотношения, определяющие вклад обратного флексоэлектрического эффекта в фоторефрактивный отклик при встречном взаимодействии стационарной волны накачки, сохраняющей левую циркулярную поляризацию, с фазово-модулированной сигнальной волной, имеющей циркулярную поляризацию противоположного знака на входной грани кристалла симметрии 23 с ориентацией (100). Экспериментальные исследования такого взаимодействия в кристалле $Bi_{12}TiO_{20}$:Fe,Cu позволили оценить значение его флексоэлектрического коэффициента: $f_{11} = 5.3$ нКл/м.

Обратный флексоэлектрический эффект состоит в возникновении в среде упругих деформаций (упругих напряжений), пропорциональных градиенту электрической поляризации (электрической напряженности) [1–3]. Значительный интерес, проявляемый в последнее время как к обратному флексоэффекту, так и к его прямому варианту (линейному отклику электрической поляризации на градиент упругих деформаций) [1–6], связан с необходимостью описания физических свойств наноструктурированных метаматериалов и новых явлений, наблюдаемых в устройствах с их использованием [3, 7].

Обратный флексоэлектрический эффект в пьезоэлектрической керамике BST наблюдался в образце трапециевидной формы, к которому прикладывалось переменное электрическое поле [2]. Максимальный градиент использовавшегося при этом поля можно оценить как ~ 7.5 МВ/м^2. Для измерения обусловленных флексоэффектом механических колебаний поверхности образца, по амплитуде не превышающих 25 пм, применялись лазерный дилатометр на основе сканирующего интерферометра Майкельсона и метод синхронного детектирования. Полученное в работе [2] высокое значение флексоэлектрического коэффициента ($\sim 10^{-4}$ Кл/м) связывается в [8] с большим значением диэлектрической проницаемости BST ($\varepsilon_r \sim 13000$), которой данный коэффициент пропорционален в соответствии с теоретическими оценками А.К. Таганцева [4, 5].

Монокристаллы, в которых флексоэлектрические эффекты обнаружены экспериментально, немногочисленны: это пьезоэлектрики виннокислый калий, сульфат лития, триглицинсульфат [9] и титанат бария [10, 11], а также не проявляющие пьезоэлектрических свойств шеелит [12] и титанат стронция [13]. В работах [9, 12] исследовалась электрическая поляризация, возникающая при деформации кручения монокристаллических образцов. Авторы [10] наблюдали искривление тонких пластин (10^{-5}–10^{-3} см) из монокристаллического $BaTiO_3$ с нанесенными на них золотыми или серебряными электродами в приложенном электрическом поле. Измерение зависимости контактной жесткости для поверхности с ориентацией (001) от радиуса вдавливаемого индентора позволило оценить один из флексоэлектрических коэффициентов исследованного образца $BaTiO_3$ [11]. Количественные оценки значений всех трех независимых флексоэлектрических коэффициентов $SrTiO_3$, имеющих порядок 10^{-9}–10^{-8} Кл/м, были получены в [13] по измерениям тока смещения, индуцируемого изгибными механическими колебаниями монокристаллических пластин срезов (001), (101) и (111) с толщинами от 50 до 500 мкм.

Неоднородные электрические поля со значительными амплитудами (1 кВ/см и более) возникают в фоторефрактивных кристаллах в результате фотоиндуцированного перераспределения зарядов по дефектным центрам [14, 15]. Взаимодействие двух встречных световых волн видимого диапазона, вызывающее такое перераспределение, приводит вследствие линейного электрооптического эффекта к формированию в кристалле отражательных фазовых голограмм, имеющих пространственный период порядка 100 нм [14, 16]. В этом случае градиенты электрической напряженности могут составлять ТВ/м^2 и индуцировать обусловленные обратным флексоэлектрическим эффектом заметные упругие деформации кристалла.

В настоящей работе будет показано, что в монокристаллах силленитов среза (100) обратный флек-

[1]e-mail: shand@ed.tusur.ru

соэлектрический эффект дает вклад в фоторефрактивный отклик, наблюдаемый при встречном взаимодействии стационарной опорной волны с фазово-модулированной сигнальной волной. Если взаимодействующие волны имеют циркулярные поляризации противоположного знака, то модуляция интенсивности выходного сигнального пучка на частоте первой гармоники определяется исключительно совместным вкладом в отклик обратного флексоэлектрического и фотоупругого эффектов. Проведенные экспериментальные исследования такого встречного взаимодействия в монокристалле $\mathrm{Bi_{12}TiO_{20}}$:Fe,Cu позволили обнаружить данный вклад и оценить значение соответствующего флексоэлектрического коэффициента как $f_{11}= 5.3$ нКл/м.

При анализе встречного взаимодействия сильной стационарной волны накачки, сохраняющей циркулярную поляризацию (например, левую), со слабой фазово-модулированной сигнальной волной, имеющей на входной грани $x = 0$ кристалла класса симметрии 23 среза (100) циркулярную поляризацию с противоположным знаком вращения, воспользуемся подходом, описанным в работе [17]. Если синусоидальная фазовая модуляция сигнального пучка происходит с частотой $\Omega \gg 1/\tau$, где τ – характерное время фотоиндуцированного перераспределения заряда по донорным и ловушечным центрам за счет диффузионного механизма, то формирующуюся в кристалле отражательную голограмму можно считать стационарной. Фазовая составляющая данной голограммы определяется следующим распределением напряженности электростатического поля:

$$E_1(x) = m^{(0)}(x) E_{SC} \sin{(Kx)}, \tag{1}$$

где $m^{(0)}(x)$ – медленно меняющийся вследствие взаимодействия и оптического поглощения контраст стационарной части картины интерференции волн сигнала и накачки, имеющей пространственный период $\Lambda = 2\pi/K = \lambda/2n_0$; λ – длина волны света; n_0 – показатель преломления для невозмущенного кристалла. Эффективное поле пространственного заряда голограммы в рамках одноуровневой зонной модели определяется выражением [14–16]

$$E_{SC} = \frac{E_D}{1 + E_D/E_q}, \tag{2}$$

где $E_D = (k_{\mathrm{B}}T/e)K$ – диффузионное поле, $E_q = eN_A/(\varepsilon K)$ – поле насыщения ловушек, k_{B} – постоянная Больцмана, T – температура, e – элементарный электрический заряд, N_A – концентрация компенсирующих акцепторных центров, ε – статическая диэлектрическая проницаемость кристалла.

Вследствие обратных эффектов, пьезоэлектрического и флексоэлектрического, поле пространственного заряда фоторефрактивной голограммы будет индуцировать в кристалле упругие поля, которые должны удовлетворять уравнению эластостатики [18]:

$$\frac{\partial}{\partial x_i} T_{ij} = 0, \tag{3}$$

где T_{ij} – тензор упругих напряжений. Строго говоря, при учете флексоэлектрического эффекта, который в работах [19, 20] определяется как пространственная дисперсия пьезоэлектрических свойств среды, характеризуемая тензором четвертого ранга f_{ijmr}, в разложении для T_{ij} необходимо принять во внимание и упругую пространственную дисперсию, определяемую тензором γ^E_{ijklr}:

$$T_{ij} = C^E_{ijkl} S_{kl} + \gamma^E_{ijklr} \frac{\partial S_{kl}}{\partial x_r} - e_{mij} E_m - f_{ijmr} \frac{\partial E_m}{\partial x_r}. \tag{4}$$

Однако для отражательной голограммы в образце среза (100) с учетом симметрии тензоров модулей упругости C^E_{ijkl}, пьезоэлектрических констант e_{mij} и тензоров f_{ijmr} и γ^E_{ijklr} [19–21] в кристаллах симметрии 23 единственная компонента тензора деформаций, индуцируемая исключительно за счет флексоэлектрического эффекта, может быть получена из (3) и (4) в следующем виде:

$$S_{11} = \frac{f_{1111}}{C^E_{1111}} \frac{dE_1}{dx_1}. \tag{5}$$

Далее, из (1) и (5) получаем, что рассматриваемая отражательная голограмма сопровождается в кристалле упругими деформациями, которые вследствие фотоупругого эффекта создают следующие возмущения диагональных компонент тензора диэлектрической проницаемости на частоте световой волны:

$$\Delta\varepsilon_{ii}(x) = -m^{(0)}(x) \left(n_0^4 p^E_{i1} \frac{f_{11}}{C^E_{11}} K E_{SC} \right) \cos Kx, \tag{6}$$

где использована сокращенная форма записи компонент тензоров $\mathbf{f}$, $\mathbf{C^E}$ и тензора упругооптических коэффициентов $\mathbf{p^E}$ [21]. В то же время основной вклад в фоторефрактивный отклик, определяемый распределением электростатического поля (1) и линейным электрооптическим эффектом, в образце среза (100) характеризуется возмущениями двух недиагональных компонент:

$$\Delta\varepsilon_{23}(x) = \Delta\varepsilon_{32}(x) = -m^{(0)}(x)(n_0^4 r^S_{41} E_{SC}) \sin Kx, \tag{7}$$

где r_{41}^S – компонента электрооптического тензора зажатого кристалла.

Используя известную методику [17] и учитывая возможный вклад во взаимодействие абсорбционной составляющей отражательной голограммы, можно получить следующие выражения для интенсивности сигнальной волны на выходной грани кристалла $x = -d$, имеющей на входной грани правую циркулярную поляризацию, и для глубины модуляции интенсивности на нулевой, первой и второй гармониках модулирующего сигнала с частотой Ω и амплитудой фазовой модуляции φ_m:

$$I_S(-d,t) \sim I_{S0}[M^{(0)}(-d) + M^{(1)}(-d)\sin\Omega t + \\ + M^{(2)}(-d)\cos 2\Omega t + \ldots], \tag{8}$$

$$M^{(0)}(-d,\varphi_m) = 1 + J_0^2(\varphi_m)\Bigg\{\exp(-\Gamma_a d) - 1 + \\ + \frac{\Gamma_{il}^2}{\Gamma_f^2 + \Gamma_a^2 + 16\rho^2 + 8\rho\Gamma_f}\Bigg[1 + \exp(-\Gamma_a d) - \\ - 2\exp\left(-\frac{\Gamma_a}{2}d\right)\cos\left(\frac{\Gamma_f}{2}d + 2\rho d\right)\Bigg]\Bigg\}, \tag{9}$$

$$M^{(1)}(-d,\varphi_m) = -4J_0(\varphi_m) \times \\ \times J_1(\varphi_m)\exp\left(-\frac{\Gamma_a}{2}d\right)\sin\left(\frac{\Gamma_f}{2}d\right), \tag{10}$$

$$M^{(2)}(-d,\varphi_m) = 4J_0(\varphi_m)J_2(\varphi_m) \times \\ \times \left[\exp\left(-\frac{\Gamma_a}{2}d\right)\cos\left(\frac{\Gamma_f}{2}d\right) - 1\right], \tag{11}$$

где ρ – удельное оптическое вращение кристалла; J_n – функция Бесселя n-го порядка; Γ_a – коэффициент связи, описывающий вклад во встречное взаимодействие абсорбционной составляющей голограммы. Коэффициенты связи Γ_{il} и Γ_f, характеризующие, соответственно, вклады в фоторефрактивный отклик, обусловленные линейным электрооптическим эффектом при левой циркулярной поляризации волны накачки и флексоэлектрическим эффектом, определяются выражениями

$$\Gamma_{il} = \frac{2\pi}{\lambda}n_0^3\left[r_{41}^S + K\frac{f_{11}\left(p_{13}^E - p_{12}^E\right)}{2C_{11}^E}\right]E_{SC}, \tag{12}$$

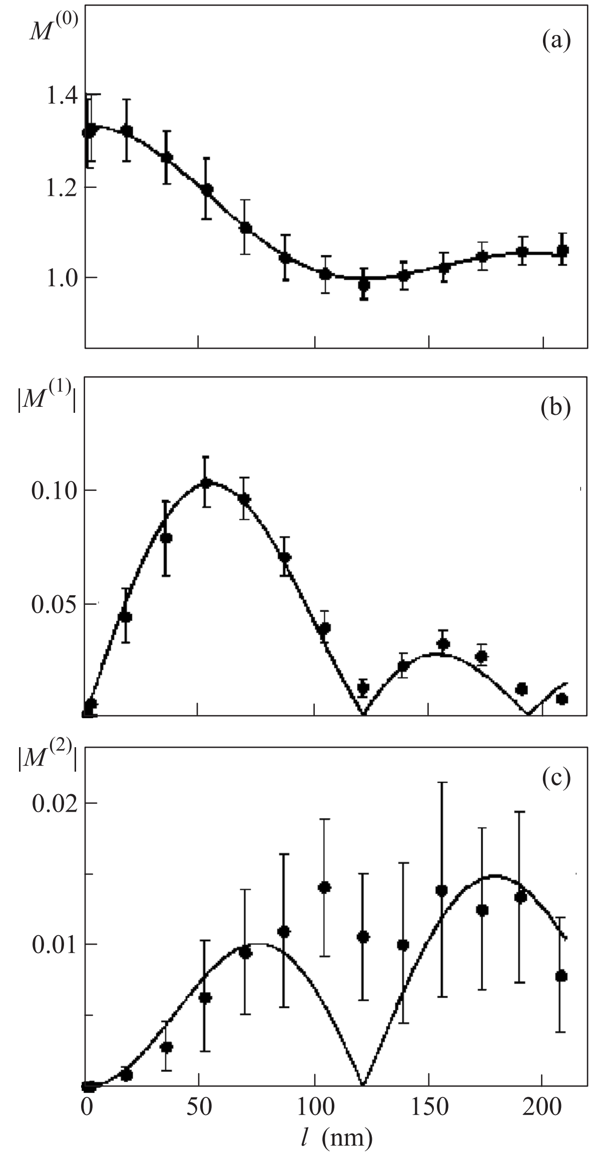
$$\Gamma_f = \frac{2\pi}{\lambda}n_0^3\frac{f_{11}}{C_{11}^E}\left(p_{13}^E + p_{12}^E\right)KE_{SC}. \tag{13}$$

Как следует из проведенного анализа, сигнал фазовой демодуляции на частоте первой гармоники в известных схемах адаптивной интерферометрии на отражательных голограммах [22, 23] при использовании взаимодействия волн циркулярной поляризации с противоположными знаками вращения в монокристаллах силленитов среза (100) определяется исключительно вкладами в фоторефрактивный отклик обратного флексоэлектрического и фотоупругого эффектов.

Для проведения экспериментальных исследований встречного взаимодействия волн с циркулярной поляризацией использовалась установка, аналогичная описанной в работе [23]. Отражательные голограммы формировались в кристалле $Bi_{12}TiO_{20}$:Cu,Fe среза (100), имеющем удельное вращение $\rho = -8.5$ град/мм на используемой длине волны 633 нм и толщину $d = 2.62$ мм. Мощность сигнального пучка на входной грани кристалла имела значение $P_{S0} \approx 28$ мкВт при мощности накачки, равной 0.5 мВт. Фазовая модуляция сигнального пучка осуществлялась путем его отражения при малом угле падения от зеркала, приклееннго к пьезокерамическому цилиндру, колеблющегося с частотой 300 Гц. Амплитуда синусоидальных колебаний зеркала l изменялась от 0.6 до 200 нм, что позволяло варьировать амплитуду фазовой модуляции $\varphi_m \approx 4\pi l/\lambda$ в широких пределах.

После взаимодействия в кристалле со стационарным пучком накачки сигнальный пучок, модулированный уже по интенсивности, регистрировался фотодиодом ФД-256, нагруженным на сопротивление $R_l = 39$ кОм и смещенным в обратном направлении. Амплитуды напряжения для первой и второй гармоник сигнала фазовой демодуляции измерялись на сопротивлении нагрузки при помощи селективного вольтметра, а постоянная составляющая сигнала – милливольтметром постоянного напряжения.

На рисунке точками представлены полученные с использованием статистической обработки данных зависимости относительных амплитуд гармоник $M^{(0)}$, $M^{(1)}$ и $M^{(2)}$ в спектре модуляции интенсивности выходного сигнального пучка, имеющего правую круговую поляризацию на входной грани кристалла, от амплитуды колебаний зеркала. Сплошные кривые на данном рисунке соответствуют расчету с использованием соотношений (9)–(11) при следующих значениях коэффициентов связи: $\Gamma_{il} = 4.14\,\text{см}^{-1}$, $\Gamma_a = -0.18\,\text{см}^{-1}$, $\Gamma_f = 0.56\,\text{см}^{-1}$. Видно, что рассматриваемая модель, принимающая во внимание совместный вклад в фоторефрактивный отклик обратного флексоэлектрического и фотоупругого эффектов для взаимодействия световых пучков на отражательной



Зависимости среднего значения (a) и относительных амплитуд первой (b) и второй (c) гармоник в спектре модуляции интенсивности выходного сигнального пучка от амплитуды колебаний отражающего зеркала

голограмме, хорошо согласуется с экспериментальными данными.

Использование материальных параметров титаната висмута ($n_0 = 2.58$, $r_{41}^S = 4.74$ пм/В, $C_{11} = 12.5 \cdot 10^{10}$ Н/м^2, $p_{12} + p_{13} = 0.295$ [24]) и соотношений (12) и (13) позволяет оценить из найденных значений Γ_f и Γ_{il} амплитуду поля пространственного заряда для исследованной отражательной голограммы и его градиент как $m^{(0)}E_{SC} \approx 2.3$ кВ/см и $m^{(0)}KE_{SC} \approx 12$ ТВ/м^2, а также величину флексоэлектрического коэффициента монокристалла $Bi_{12}TiO_{20}$:Cu,Fe как $f_{11} = 5.3$ нКл/м.

Авторы благодарны А.К. Таганцеву и А.В. Шамраю за полезные консультации. Работа выполнена в рамках госзадания Минобрнауки РФ на 2012 год (проект # 7.2647.2011) и ФЦП “Научные и научно-педагогические кадры инновационной России” (госконтракт # 02.740.11.0553).

1. В. Л. Инденбом, Е. Б. Логинов, М. А. Осипов, Кристаллография **26**, 1157 (1981).
2. J. Y. Fu, W. Zhu, N. Li, and L. E. Cross, J. of Applied Phys. **100**, 024112 (2006).
3. B. Hu, W. Zhu, N. Li, and L. E. Cross, J. of Applied Phys. **106**, 104109 (2009).
4. А. К. Таганцев, УФН **152**, 423 (1987).
5. A. K. Tagantsev, Phys. Rev. B **34**, 5883 (1988).
6. А. С. Юрков, Письма в ЖЭТФ **94**, 490 (2011).
7. L. E. Cross, J. of Mat. Science **41**, 53 (2006).
8. W. Huang, K. Kim, S. Zhang et al., Proc. of the ASMEE 2011 Int. Mechanical Engineering Cong. Exp. IMECE2011-64520, Denver, Colorado, USA.
9. I. M. Zheludev, Chechosl. J. Phys. **16**, 368 (1966).
10. Э. В. Бурсиан, О. И. Зайковский, ФТТ **10**, 1413 (1968).
11. M. Gharbi, Z. H. Sun, P. Sharma et al., Int. J. of Solids and Structures **48**, 249 (2011).
12. И. С. Желудев, Ю. С. Лихачева, Н. А. Лилеева, Кристаллография **14**, 514 (1969).
13. P. Zubko, G. Catalan, A. Buckley et al., Phys. Rev. Lett. **99**, 167601 (2007).
14. М. П. Петров, С. И. Степанов, А. В. Хоменко, *Фоторефрактивные кристаллы в когерентной оптике*, СПб.: Наука, 1992.
15. Б. И. Стурман, В. М. Фридкин, *Фотогальванический эффект в средах без центра симметрии и родственные явления*, М.: Наука, 1992.
16. С. М. Шандаров, Н. И. Буримов, Ю. Н. Кульчин и др., Квантовая электроника **38**, 1059 (2008).
17. S. M. Shandarov, A. A. Kolegov, N. I. Burimov et al., Phys. Wave Phenomena **17**, 39 (2009).
18. S. M. Shandarov, Appl. Phys. A **55**, 91 (1992).
19. А. Д. Вужва, В. Е. Лямов, Кристаллография **22**, 131 (1977).
20. В. Е. Лямов, *Поляризационные эффекты и анизотропия взаимодействия акустических волн в кристаллах*, М.: Изд-во Моск. ун-та, 1983.
21. Ю. И. Сиротин, М. П. Шаскольская, *Основы кристаллофизики*, М.: Наука, 1975.
22. V. Petrov, J. Hahn, J. Petter et al., Opt. Lett. **30**, 3138 (2005).
23. А. А. Колегов, С. М. Шандаров, Г. В. Симонова и др., Квантовая электроника **41**, 847 (2011).
24. S. Shandarov, A. Emelyanov, O. Kobozev, and A. Reshet'ko, Proceedings of SPIE **2801**, 221 (1996).