

## П'ЕЗООПТИЧНА РЕЛАКСАЦІЯ В КРИСТАЛАХ ТРИГЛІЦИНСЕЛЕНАТУ

Б. Г. Мицик, Н. М. Дем'янишин

*Львівський центр Інституту космічних досліджень НАНУ і НКАУ,  
вул. Наукова, 5а, Львів, 290601, Україна*

(Отримано 25 липня 1997, в остаточному вигляді — 18 листопада 1997)

Вивчено фотопружні релаксації в сегнетоелектричних кристалах тригліцинселенату. Виявлено температурні аномалії амплітуд релаксації. Відносні амплітуди релаксації  $\beta_{km}$  характеризуються сильною анізотропією і приймають значення від -5% до +13% при  $T = 16^\circ\text{C}$  і від +16% до +90% в околі фазового переходу залежно від геометрії експерименту. Нетиповий хід має температурна залежність відносної амплітуди релаксації  $\beta_{31}$ , яка в околі  $T_c$  змінюється від 0% до  $\pm\infty\%$ . Фотопружні релаксації й особливості їхньої температурної поведінки пояснюємо в рамках п'езокалоричного механізму. Проведені відповідні розрахунки.

**Ключові слова:** фотопружна релаксація, індукована різниця ходу, п'езокалоричний ефект, температурні аномалії релаксації фотопружності.

PACS number(s): 78.20.Np

При дії одновісного тиску на оптичний матеріал, очевидно, слід очікувати релаксації оптичних параметрів, тобто часової зміни оптичних параметрів при дії незмінного в часі механічного напруження  $\sigma_m$ . Цей ефект, який можна назвати п'езооптичною або фотопружною релаксацією, на відміну від пружної релаксації [1, 2], не вивчений, хоча його практична важливість зумовлена використанням фотопружних (п'езооптичних) пристроїв для вимірювання сили і тиску [3–6]. Саме релаксаційні параметри (амплітуда і час релаксації) визначають динамічні і похибкові границі таких пристроїв.

У цій роботі описана релаксація п'езооптичного ефекту для кристалів тригліцинселенату (ТГСе) при дії механічних напружень  $\sigma_m$  в області пружних деформацій. У цьому випадку відсутні залишкові явища, і такі релаксаційні зміни називають, як правило, ефектом пружної післядії. Реєстрували часи  $\tau$  і амплітуди релаксації різниці ходу, індукованої тиском  $\sigma_m$ . Відносна амплітуда релаксації  $\beta_{km}$  введена співвідношенням:

$$\beta_{km} = (\delta\Delta_{km}^{rel} / \delta\Delta_{km}) \cdot 100\%, \quad (1)$$

де  $\delta\Delta_{km}$  — індукована механічним напруженням різниця ходу,  $\delta\Delta_{km}^{rel}$  — релаксаційна зміна індукованої різниці ходу (абсолютна релаксація різниці ходу). Індекси  $k, m$  означають, відповідно, напрями поширення світла і дії тиску, вони приймають значення 1, 2, 3, які відповідають осям оптичної індикатрисы кристала  $X_1, X_2, X_3$ .

Абсолютні релаксації різниці ходу  $\delta\Delta_{km}^{rel}$  визначали відомим поляризаційно-оптичним методом [7], виходячи з релаксації інтенсивності світла  $I$  на лінійній ділянці періодичної залежності  $I(\Delta_k)$ ;  $\Delta_k$  — різниця ходу світлової хвилі в кристалі. Величини індукованої різниці ходу  $\delta\Delta_{km}$  у межах від  $\lambda/4$  до  $\lambda/2$  зада-

вали величиною  $\sigma_m$  на основі співвідношення [8]:

$$\pi_{km}^o = -\frac{2\delta\Delta_{km}}{d_k\sigma_m}, \quad (2)$$

при використанні відомих для ТГСе п'езооптичних коефіцієнтів (ПОК)  $\pi_{km}^o$  [9].

Досліджували зразки кристалів ТГСе кубічної форми розмірами  $5 \times 5 \times 5$  мм, зорієнтовані вздовж осей оптичної індикатрисы. Необхідну оптичну якість зразків контролювали на основі лазерної поляризаційно-оптичної інтерференційної картини (довжина світлової хвилі  $\lambda=632.8$  нм).

На рис. 1 подано приклади часових залежностей відносних амплітуд релаксації  $\beta_{km}(T)$  для різних геометрій експерименту. Тут відзначимо, що час наростання  $\sigma_m$  становить 0,2 с. Якщо провести інтерполяцію залежностей  $\beta_{km}(t)$  до значення  $t=-0,2$  с, то можна оцінити величину неврахованої частини  $\beta_{km}$  (чи  $\delta\Delta_{km}^{rel}$ ). Вона складає 1-2% від величини  $\beta_{km}$  і тому не враховується. Бачимо, що для амплітуд п'езооптичної релаксації  $\beta_{km}$  характерна значна анізотропія залежно від геометрії експерименту, включаючи знакову анізотропію. Знак визначали за таким критерієм: якщо  $\delta\Delta_{km}^{rel}$  збільшує індуковану різницю ходу  $\delta\Delta_{km}$ , то знак додатний, якщо зменшує — від'ємний. Звернемо увагу на особливість напрямку 2: при дії тиску в цьому напрямку амплітуди релаксації є великими і практично однакові ( $\beta_{12} \approx \beta_{32}$ ), при поширенні світла в цьому напрямку амплітуди малі, причому  $\beta_{21} < \beta_{23}$ . Відзначимо також нерівність  $\beta_{12} \leq \beta_{13}$ . Ці зауваження будуть обговорені нижче в рамках запропонованого механізму ефекту п'езооптичної релаксації та його температурної залежності.

Що стосується часів релаксації  $\tau$ , то вони становлять 50-80 сек і в межах точности експерименту

не залежать від величини  $\sigma_m$  (10–100 кг/см<sup>2</sup>) та незначно збільшуються в області фазового переходу (ФП) — 60–90 сек.

На рис. 2 показано температурні залежності абсолютних релаксацій різниць ходу, приведених до одиниці довжини кристала, а на рис. 3 — температурні залежності відносних амплітуд релаксації  $\beta_{km}$ . Виявлені суттєві аномалії амплітуд релаксації в області ФП. При цьому контрастність аномалій, мірою якої може бути відношення амплітуди релаксації при довільній температурі  $T \leq T_c$  до амплітуди релаксації при початковій (кімнатній) температурі, для залежностей  $\beta_{km}(T)$  значно менша, ніж для  $\delta\Delta_{km}^{rel}(T)$ . Це пояснюємо на основі виразу (1), у якому значення релаксації ділиться на індуковану різницю ходу  $\delta\Delta_{km}$ . Остання, згідно з (2), прямо пропорційна ПОК  $\pi_{km}^o$ , який збільшується при підвищенні температури до  $T_c$  і тим самим частково компенсує зростання  $\delta\Delta_{km}^{rel}$ .

Ефект п'єзооптичних релаксацій вдалося пояснити, спираючись на п'єзокалоричний механізм. А саме, швидка дія  $\sigma_m$  приводить до адіабатичної зміни температури зразка на величину  $\delta T^{rel}$ , пропорційну величині  $\sigma_m$ . Надалі температура зразка за деякий час  $\tau$  (час релаксації) внаслідок теплообміну зі зовнішнім середовищем повертається до вихідного стану. Ця релаксаційна зміна температури зумовлює температурну зміну різниці ходу  $\delta\Delta_{km}^{rel}$ . Такий механізм п'єзооптичної релаксації підтверджується розрахунками згідно з таким співвідношенням:

$$\delta\Delta_{km}^{rel} = \frac{d\Delta_k}{dT} \delta T_m^{rel}(T) = \frac{d\Delta_k}{dT} \frac{dT_m^{rel}}{d\sigma_m} \sigma_m, \quad (3)$$

де індекс  $m$  при  $\delta T_m^{rel}$  указує на залежність п'єзокалоричного ефекту від напрямку дії одностороннього тиску  $\sigma_m$ , а  $dT_m^{rel}/d\sigma_m$  — п'єзокалоричний коефіцієнт.

Значення температурних похідних  $d\Delta_k(T)/dT$  визначені з даних роботи [10]. Що стосується значень  $\delta T_m^{rel}(T)$ , то їх можна визначити або прямим способом, виходячи з температурних залежностей п'єзокалоричних коефіцієнтів  $dT_m^{rel}/d\sigma_m$  [11], або на основі температурних залежностей коефіцієнтів термічного розширення  $\alpha_m(T)$ , використовуючи відоме співвідношення [12]:

$$\delta T_m^{rel} = -(T_o/C_p)\alpha_m\sigma_m, \quad (4)$$

де  $T_o$  — температура зразка і зовнішнього середовища,  $C_p$  — теплоємність, віднесена до одиниці об'єму кристала.

Оскільки в [11] подані коефіцієнти  $dT_m^{rel}/d\sigma_m$  тільки для кристалів ТГС, то визначення  $\delta T_m^{rel}$  у кристалах ТГСе проведено на основі (4). Із (3) і (4) отримуємо співвідношення для розрахунку абсолютних релаксацій:

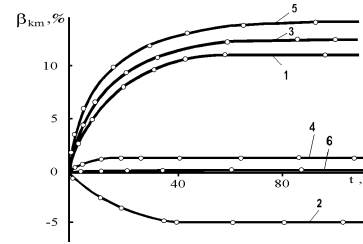


Рис. 1. Відносні релаксації фотопружності  $\beta_{km}(t)$  для кристалів ТГСе при  $T = 16^\circ\text{C}$ ,  $\lambda=0,63$  мкм: 1— $\beta_{12}$ ; 2— $\beta_{31}$ ; 3— $\beta_{32}$ ; 4— $\beta_{23}$ ; 5— $\beta_{13}$ ; 6— $\beta_{21}$ .

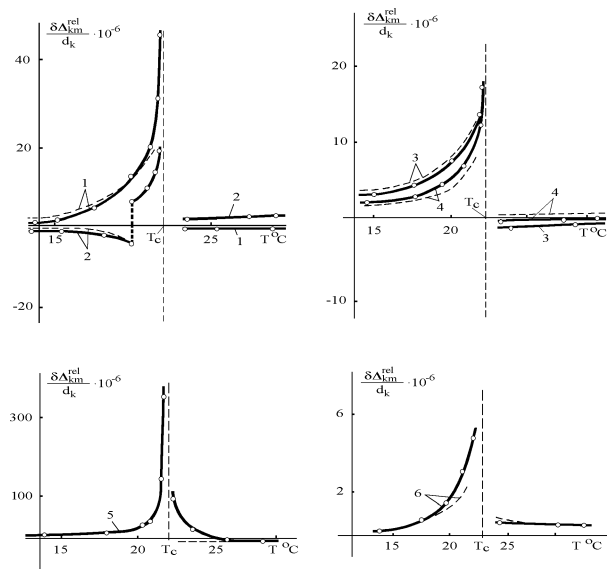


Рис. 2. Температурні залежності абсолютних релаксацій індукованих різниць ходу кристалів ТГСе,  $\lambda=0,63$  мкм: 1 —  $\delta\Delta_{12}^{rel}/d_1$ ; 2— $\delta\Delta_{31}^{rel}/d_3$ ; 3 —  $\delta\Delta_{32}^{rel}/d_2$ ; 4— $\delta\Delta_{23}^{rel}/d_2$ ; 5 —  $\delta\Delta_{13}^{rel}/d_1$ ; 6 —  $\delta\Delta_{21}^{rel}/d_2$ . (Суцільна лінія — експеримент, пунктирна — розрахунок).

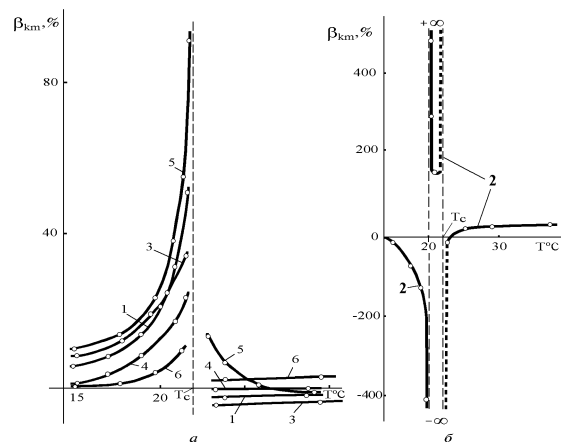


Рис. 3. Температурні аномалії відносних релаксацій фотопружності  $\beta_{km}$  для кристалів ТГСе: 1— $\beta_{12}$ ; 2— $\beta_{31}$ ; 3— $\beta_{32}$ ; 4— $\beta_{23}$ ; 5— $\beta_{13}$ ; 6— $\beta_{21}$ . (Суцільна лінія — експеримент, пунктирна продовження — розрахунок).

$$\delta\Delta_{km}^{rel} = -\frac{T_o}{C_p} \frac{d\Delta_k}{dT} \alpha_m \sigma_m. \quad (5)$$

$$\beta_{km}^a = \frac{(\Delta_k^{sp})' \eta_m \sigma_m d_k}{\gamma_m (\Delta_k^{sp})' \sigma_m d_k} = \eta_m / \gamma_m. \quad (9)$$

Для розрахунків використані значення питомої теплоємності  $C_m(T)$  кристалів ТГСе із [13], і, за співвідношенням  $C_p = C_m \rho$ , визначено  $C_p(T)$ , питома густина  $\rho=1690$  кг/м<sup>3</sup> визначена в [14]; коефіцієнти теплового розширення  $\alpha_m(T)$  уздовж кристалофізичних осей  $X_1, X_2, X_3$ , які збігаються з осями оптичної індикатриси кристалів ТГСе, розраховані на основі компонент тензора другого рангу  $\alpha_m$ . Температурна залежність цих компонент подана в [15] для системи координат  $X, Y, Z$ , повернутої навколо осі  $Y \equiv X_2$  на кут  $20^\circ$  відносно осей  $X_1$ , і  $X_3$  оптичної індикатриси.

На рис. 2 пунктиром показано розраховані температурні залежності абсолютних п'езооптичних релаксацій, які якісно і кількісно збігаються з експериментальними залежностями. Це підтверджує п'езокалоричний механізм п'езооптичних релаксацій і їхніх температурних залежностей.

Проаналізуємо аномальну частину відносної амплітуди релаксації  $\beta_{km}$ , ураховуючи температурні аномалії п'езооптичних коефіцієнтів. Аномалію залежності  $\beta_{km}(T)$  визначимо як різницю між повним значенням у сегнетоелектричній фазі і значенням, екстрапольованим із параелектричної фази, та позначимо  $\beta_{km}^a$ . Очевидно, що аномальна частина відносної амплітуди релаксації  $\beta_{km}^a$  зумовлена, згідно з (1), відношенням аномальних частин абсолютної релаксації й індукованої різниці ходу. Тому з врахуванням (2) запишемо:

$$\beta_{km}^a = (\delta\Delta_{km}^{rel})^a / (\delta\Delta_{km})^a = -\frac{2(\delta\Delta_{km}^{rel})^a}{(\pi_{km}^o)^a d_k \sigma_m}, \quad (6)$$

де  $(\pi_{km}^o)^a$  — аномальна частина п'езооптичного коефіцієнта  $\pi_{km}^o$ , яка дається виразом [16,17]

$$(\pi_{km}^o)^a = -\frac{2}{d_k} \frac{dT_c}{d\sigma_m} \frac{d\Delta_k^{sp}}{dT} = -\frac{2}{d_k} \frac{d\Delta_k^{sp}}{dT} \gamma_m, \quad (7)$$

де  $\Delta_k^{sp}$  — спонтанна різниця ходу,  $dT_c/d\sigma_m = \gamma_m$  — коефіцієнт зміщення температури ФП.

Тепер врахуємо, що аномальна частина абсолютної релаксації  $(\delta\Delta_{km}^{rel})^a$  зумовлена аномальною, тобто спонтанною, частиною різниці ходу. У результаті вираз для  $(\delta\Delta_{km}^{rel})^a$ , відповідно до (3), запишемо як

$$(\delta\Delta_{km}^{rel})^a = \frac{d\Delta_k^{sp}}{dT} \frac{dT_m^{rel}}{d\sigma_m} \sigma_m. \quad (8)$$

Підставивши (7) і (8) у (6) і ввівши позначення  $d\Delta_k^{sp}/dT = (\Delta_k^{sp})'$  — температурна похідна спонтанної різниці ходу (термооптичний коефіцієнт спонтанної різниці ходу),  $dT_m^{rel}/d\sigma_m = \eta_m$  — п'езокалоричний коефіцієнт, отримуємо:

Отже, аномальна частина відносної амплітуди п'езооптичної релаксації  $\beta_{km}^a$  не залежить ні від оптичних параметрів сегнетоелектрика, ні від напрямку поширення світла. Величина  $\beta_{km}^a$ , будучи незалежною також від величини механічного напруження, визначається тільки напрямком дії одновісного тиску. Справедливість цього твердження демонструють залежності  $\beta_{32}(T)$  і  $\beta_{12}(T)$ , які практично збігаються (рис. 3а, криві 1,3). З іншого боку, не збігаються залежності  $\beta_{13}(T)$  і  $\beta_{23}(T)$ , які характеризуються напрямком дії тиску  $m=3$ , і залежності  $\beta_{21}(T)$  і  $\beta_{31}(T)$  із  $m=1$ . Пояснимо це. Величини п'езокалоричних коефіцієнтів в околі ФП, а також коефіцієнтів  $(\pi_{km}^o)^a$  і значень  $(\delta\Delta_{km}^{rel})^a/\sigma_m$  суттєво залежать від величини діючого напруження  $\sigma_m$ . Це пов'язано виключно з тим, що  $\sigma_m$  зміщує  $T_c$ , причому для кристалів ТГСе на значну величину [18]:  $-1,6; -1,2; +3,0$  град/(100 кг/см<sup>2</sup>) для напрямків  $m=1, 2, 3$ , відповідно. Тому при таких великих значеннях температурних похідних  $d\beta_{km}/dT$  значення  $\beta_{km}$  при  $T \rightarrow T_c$  дуже суттєво залежить від величини  $\sigma_m$ . Наприклад, із рис. 3 бачимо, що для  $\sigma_3=50$  кг/см<sup>2</sup> (тоді  $\Delta T_c = +1,5^\circ$ ) значення  $\beta_{13}$  змінюється з 90% до 20%. Аналогічне можна продемонструвати і на залежностях  $\pi_{km}^o(T)$ ,  $\delta\Delta_{km}^{rel}(T)$ ,  $\delta T_m^{rel}(T)$ . Отже, в околі  $T_c$  співвідношення (9) давало б задовільні результати тільки при малих  $\sigma_m \rightarrow 0$  і при малих похибках температур, при яких визначаються порівнювальні значення  $\beta_{km}^a$  (наприклад,  $\beta_{13}^a$  і  $\beta_{23}^a$ ) і, відповідно,  $\delta\Delta_{km}^{rel}$  та  $(\pi_{km}^o)^a$ . За реальних умов експерименту, співвідношення (9) задовільно описує залежності  $\beta_{km}(T)$  на віддалі 2-3 градуси від  $T_c$ .

На завершення зробимо два зауваження:

1. Нестандартний хід залежності  $\beta_{31}(T)$  в околі  $T_c$  (рис. 3б) зумовлений виключно тим фактом, що п'езооптичний коефіцієнт  $\pi_{31}^o$  і, відповідно,  $\delta\Delta_{31}$ , яке входить у знаменник виразу (1) для  $\beta_{km}$ , приймають при  $T=20^\circ\text{C}$  нульове значення [9]. А конкретніше, оскільки  $\beta_{31}$  при  $T < 20^\circ\text{C}$  має від'ємні значення (рис. 3б), тобто  $\delta\Delta_{31}^{rel}$  зменшує індуковану різницю ходу  $\delta\Delta_{31}$ , то при  $\pi_{31}^o \rightarrow +0$  величина  $\beta_{31} \rightarrow -\infty$ , а з переходом через нуль коефіцієнт  $\pi_{31}^o \rightarrow -0$ , тому величина  $\beta_{31} \rightarrow +\infty$ . Другий розрив  $\beta_{31} \rightarrow \pm\infty$  простежуємо при  $T \rightarrow \pm T_c$ , який теж формується переходом  $\pi_{31}^o$  через нульове значення, оскільки при  $T \rightarrow -T_c$  коефіцієнт  $\pi_{31}^o$  від'ємний, а при  $T \rightarrow +T_c$  — додатний [9].

2. Особливості релаксаційних кривих (рис. 1) при  $T=16^\circ\text{C}$ , які обговорено вище, мають просте пояснення в рамках запропонованого п'езокалоричного механізму п'езооптичних релаксацій. Конкретизуємо це з допомогою співвідношення, яке запишемо, виходячи з (1), (2) і (5)

$$\beta_{km} = 2 \frac{T_o}{C_p} \frac{d\Delta_k}{dT} \frac{\alpha_m}{\pi_{km}^o d_k} \cdot 100\%. \quad (10)$$

А саме:  $\beta_{12}$  і  $\beta_{32}$  практично однакові, бо, згідно з (10), відрізняються лише термооптичними коефіцієнтами  $\delta\Delta_k/dT$ , які для напрямків  $k=1$  і  $k=3$  є сумірними [10], і п'єзооптичними коефіцієнтами  $\pi_{12}^o$  і  $\pi_{32}^o$ , які при цій температурі є рівними і становлять  $12 \cdot 10^{-12}$  м<sup>2</sup>/Н [9]; для напрямку поширення світла

$k=2$  нерівність  $\beta_{21} < \beta_{23}$  зумовлена, згідно з (5) і (10), нерівністю коефіцієнтів термічного розширення  $\alpha_1 < \alpha_3$ , а нестрога нерівність  $\beta_{12} \leq \beta_{13}$  зумовлена сумірністю в межах 5% відношень  $\alpha_2/\pi_{12}^o$  і  $\alpha_3/\pi_{13}^o$ , визначених із [9,15], які входять у (10).

- 
- [1] В. Т. Зубчанинов, *Основы теории упругости и пластичности* (Высшая школа, Москва, 1980).
- [2] A. S. Nowick, V. S. Berry, *Anelastic relaxation in crystalline solids* (Academic Press, New York and London, 1972).
- [3] Ю. Н. Кликушин, А.С. 1000795 СССР, МКИ G01L 1/24. № 3296535/18-10; заявлено 25.05.81; опубл. 28.02.83, бюл. № 8, 3 с.
- [4] М. И. Ермохин, В. А. Ширяев, А.С. 1204979 СССР, МКИ G01L 1/24. № 3755850/24-10; заявлено 29.03.84; опубл. 15.01.86, бюл. № 2, 4 с.
- [5] Е. П. Чекмарев, М. П. Кукик, Е. К. Галанов, *Опт.-мех. пром.* **12**, 45 (1979).
- [6] В. Г. Mytsyk, A. S. Andrushchak, N. M. Demyanyshyn et al., *Proceedings of SPIE* **3238**, 192 (1997).
- [7] А. С. Сонин, А. С. Василевская, *Электрооптические кристаллы* (Атомиздат, Москва, 1971).
- [8] Б. Г. Мыцык, в *Оптика анизотропных сред. Междуведомственный сборник* (Москва, 1988).
- [9] В. М. Варикаш, Б. Г. Мыцык, Н. А. Романюк, *Физ. электроника* **21**, 60 (1980).
- [10] Н. Р. Иванов, С. Я. Бендерский, И. Т. Тухтасунов, *Изв. Акад. Наук СССР, Сер. физ.* **39**, 798 (1975).
- [11] К. Imai, *J. Phys. Soc. Jpn.* **38**, 836 (1975).
- [12] Ю. И. Сиротин, М. П. Шаскольская, *Основы кристаллофизики* (Наука, Москва, 1979).
- [13] Б. А. Струков, С. А. Тараскин, В. А. Копчик, В. М. Варикаш, *Кристаллография* **13**, 514 (1968).
- [14] R. Pepinski, Y. Okaya, F. Yona, *Bull. Am. Phys. Soc.* **2**, 220 (1957).
- [15] J. Stankowski, W. Malinowski, *Acta Phys. Pol.* **A58**, 773 (1980).
- [16] С. С. Коцур, Б. Г. Мыцык, В. А. Ромашко, *Кристаллография* **37**, 1517 (1992).
- [17] Б. Г. Мыцык, В. А. Ромашко, Я. И. Шопя, *Физ. тверд. тела* **35**, 2272 (1993).
- [18] J. Stankowska, I. Polovinko, J. Stankowski, *Ferroelectrics* **21**, 529 (1978).

## THE PIEZOOPTIC RELAXATION IN CRYSTALS OF THREEGLICYN SELENATE

V. G. Mytsyk, N. M. Demyanyshyn

*Lviv Center of the Institute of Space Investigations, Naukova Str., 5a, UA-290601, Lviv, Ukraine*

The photoelastic relaxation in ferroelectric crystals of threeglicyn selenate are investigated. The thermal anomalies of relaxation amplitudes are studied. The relative relaxation amplitudes  $\beta_{km}$  have a large anisotropy and lie in the value range from -5% to +13% at  $T=16^\circ\text{C}$  and from +16% to +90% at the phase transition region. The results depend on the geometry of the experiment. A specific behaviour have been found to be characteristic of the temperature dependence of the relative relaxation amplitude  $\beta_{31}$ . Its value is changed in the region near  $T_c$  from 0% to  $\pm\infty\%$ . The photoelastic relaxations and their temperature behaviour is written on the basis of a piezocaloric mechanism. Corresponding calculations are performed.