ЖУРНАЛ ФІЗИЧНИХ ДОСЛІДЖЕНЬ
т. 2, № 1 (1998) с. 139–142

JOURNAL OF PHYSICAL STUDIES
v. 2, No 1 (1998) p. 139–142

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

Ключові слова: фотопружна релаксація, індукована різниця ходу, п'єзокалоричний ефект, температурні аномалії релаксацій фотопружности.

PACS number(s): 78.20.Hp

При дії одновісного тиску на оптичний матеріял, очевидно, слід очікувати релаксації оптичних параметрів, тобто часової зміни оптичних параметрів при дії незмінного в часі механічного напруження σ_m. Цей ефект, який можна назвати п'єзооптичною або фотопружною релаксацією, на відміну від пружної релаксації [1, 2], не вивчений, хоча його практична важливість зумовлена використанням фотопружних (п'єзооптичних) 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'єзооптичного ефекту для кристалів тригліцинселенату (ТГСе) при дії механічних напружень σ_m в області пружних деформацій. У цьому випадку відсутні залишкові явища, і такі релаксаційні зміни називають, як правило, ефектом пружної післядії. Реєстрували часи τ і амплітуди релаксації різниці ходу, індукованої тиском σ_m. Відносна амплітуда релаксації β_{km} введена співвідношенням:

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

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 індикатриси кристала X_1, X_2, X_3.

Абсолютні релаксації різниці ходу $\delta\Delta_{km}^{rel}$ визначали відомим поляризаційно-оптичним методом [7], виходячи з релаксації інтенсивности світла I на лінійній ділянці періодичної залежности $I(\Delta_k)$; Δ_k — різниця ходу світлової хвилі в кристалі. Величини індукованої різниці ходу $\delta\Delta_{km}$ у межах від $\lambda/4$ до $\lambda/2$ задавали величиною σ_m на основі співвідношення [8]:

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

при використанні відомих для ТГСе п'єзооптичних коефіцієнтів (ПОК) π_{km}^{o} [9].

Досліджували зразки кристалів ТГСе кубічної форми розмірами 5×5×5 мм, зорієнтовані вздовж осей оптичної індикатриси. Необхідну оптичну якість зразків контролювали на основі лазерної поляризаційно-оптичної інтерференційної картини (довжина світлової хвилі λ=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 σ_m становить 0,2 с. Якщо провести інтерполяцію залежностей $\beta_{km}(t)$ до значення t=-0,2 с, то можна оцінити величину неврахованої частини β_{km} (чи $\delta\Delta_{km}^{rel}$). Вона складає 1-2% від величини β_{km} і тому не враховується. Бачимо, що для амплітуд п'єзооптичної релаксації β_{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'єзооптичної релаксації та його температурної залежности.

Що стосується часів релаксації τ, то вони становлять 50-80 сек і в межах точности експерименту не залежать від величини σ_m (10–100 кг/см^2) 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 β_{km}. Виявлені суттєві аномалії амплітуд релаксації в області ФП. При цьому контрастність аномалій, мірою якої може бути відношення амплітуди релаксації при довільній температурі $T \le T_c$ 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 π_{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 σ_m приводить до адіябатичної зміни температури зразка на величину δT^{rel}, пропорційну величині σ_m. Надалі температура зразка за деякий час τ (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:

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

де індекс m при δT_m^{rel} указує на залежність п'єзокалоричного ефекту від напрямку дії одностороннього тиску σ_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]:

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

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 δT_m^{rel} у кристалах ТГСе проведене на основі (4). Із (3) і (4) отримаємо співвідношення для розрахунку абсолютних релаксацій:

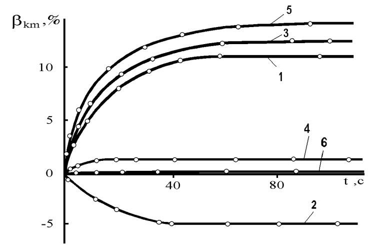

Рис. 1. Відносні релаксації фотопружности $\beta_{km}(t)$ для кристалів ТГСе при $T = 16°$C, λ=0,63 мкм: 1—β_{12}; 2—β_{31}; 3—β_{32}; 4—β_{23}; 5—β_{13}; 6—β_{21}.

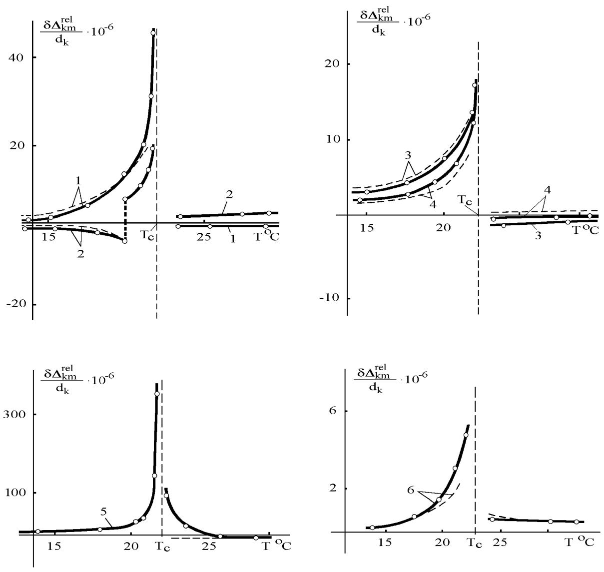

Рис. 2. Температурні залежності абсолютних релаксацій індукованих різниць ходу кристалів ТГСе, λ=0,63 мкм: 1 — $\delta\Delta_{12}^{rel}/d_1$; 2—$\delta\Delta_{31}^{rel}/d_3$; 3 — $\delta\Delta_{32}^{rel}/d_3$; 4—$\delta\Delta_{23}^{rel}/d_2$; 5 — $\delta\Delta_{13}^{rel}/d_1$; 6 — $\delta\Delta_{21}^{rel}/d_2$.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

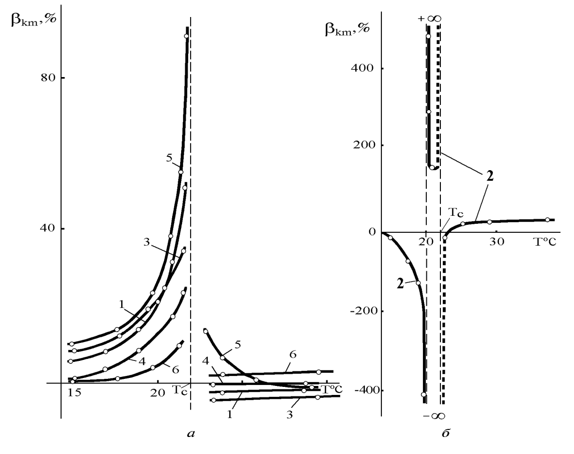

Рис. 3. Температурні аномалії відносних релаксацій фотопружности β_{km} для кристалів ТГСе: 1—β_{12}; 2—β_{31}; 3—β_{32}; 4—β_{23}; 5—β_{13}; 6—β_{21}. (Суцільна лінія — експеримент, пунктирне продовження — розрахунок).

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

Для розрахунків використані значення питомої теплоємности $C_m(T)$ кристалів ТГСе із [13], і, за співвідношенням $C_p = C_m\rho$, визначено $C_p(T)$, питома густина ρ=1690 кг/м^3 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 ранґу α_m. Температурна залежність цих компонент подана в [15] для системи координат X, Y, Z, повернутої навколо оси $Y \equiv X_2$ на кут 20° відносно осей X_1, і X_3 оптичної індикатриси.

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

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

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

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

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

де Δ_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

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

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'єзокалоричний коефіцієнт, отримаємо:

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

Отже, аномальна частина відносної амплітуди п'єзооптичної релаксації β_{km}^a не залежить ні від оптичних параметрів сеґнетоелектрика, ні від напрямку поширення світла. Величина β_{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'єзокалоричних коефіцієнтів в околі ФП, а також коефіцієнтів $(\pi_{km}^o)^a$ і значень $(\delta\Delta_{km}^{rel}/\sigma_m)$ суттєво залежать від величини діючого напруження σ_m. Це пов'язано виключно з тим, що σ_m зміщує T_c, причому для кристалів ТГСе на значну величину [18]: -1,6; -1,2; +3,0 град/(100 кг/см^2) для напрямків m=1, 2, 3, відповідно. Тому при таких великих значеннях температурних похідних $d\beta_{km}/dT$ значення β_{km} при $T \to T_c$ дуже суттєво залежить від величини σ_m. Наприклад, із рис. 3 бачимо, що для σ_3=50 кг/см^2 (тоді $\Delta T_c = +1{,}5°$) значення β_{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 $\sigma_m \to 0$ і при малих похибках температур, при яких визначаються порівнювальні значення β_{km}^a (наприклад, β_{13}^a і β_{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 залежности $\beta_{31}(T)$ в околі T_c (рис. 3б) зумовлений виключно тим фактом, що п'єзооптичний коефіцієнт π_{31}^o і, відповідно, $\delta\Delta_{31}$, яке входить у знаменник виразу (1) для β_{km}, приймають при T=20°C нульове значення [9]. А конкретніше, оскільки β_{31} при T<20°C має від'ємні значення (рис. 3б), тобто $\delta\Delta_{31}^{rel}$ зменшує індуковану різницю ходу $\delta\Delta_{31}$, то при $\pi_{31}^o \to +0$ величина $\beta_{31} \to -\infty$, а з переходом через нуль коефіцієнт $\pi_{31}^o \to -0$, тому величина $\beta_{31} \to +\infty$. Другий розрив $\beta_{31} \to \pm\infty$ простежуємо при $T \to \pm T_c$, який теж формується переходом π_{31}^o через нульове значення, оскільки при $T \to -T_c$ коефіцієнт π_{31}^o від'ємний, а при $T \to +T_c$ — додатний [9].

2. Особливості релаксаційних кривих (рис. 1) при T=16°C, які обговорено вище, мають просте пояснення в рамках запропонованого п'єзокалоричного механізму п'єзооптичних релаксацій. Конкретизуємо це з допомогою співвідношення, яке записуємо, виходячи з (1), (2) і (5)

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

А саме: β_{12} і β_{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 π^o_{12} і π^o_{32}, які при цій температурі є рівними і становлять $12{\cdot}10^{-12}$ м^2/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 α_2/π^o_{12} і α_3/π^o_{13}, 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, B. S. Berru, *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] B. G. Mytsyk, A. S. Andrushchak, N. M. Demyanyshyn et al., Procedings 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] K. 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. Копцик, 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. A**58**, 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. Шопа, 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

B. 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 β_{km} have a large anisotropy and lie in the value range from -5% to +13% at T=16°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 β_{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.