ЖУРНАЛ ФІЗИЧНИХ ДОСЛІДЖЕНЬ
т. 15, № 2 (2011) 2703(6 с.)

JOURNAL OF PHYSICAL STUDIES
v. 15, No. 2 (2011) 2703(6 p.)

РОЗРАХУНОК АБСОЛЮТНИХ П'ЄЗООПТИЧНИХ КОНСТАНТ КРИСТАЛІВ ТГС ІЗ ДОМІШКОЮ L-ТРЕОНІНУ

В. Й. Стадник, М. О. Романюк, Ю. І. Кірик
Львівський національний університет імені Івана Франка,
вул. Кирила і Мефодія, 8, Львів, 79005, Україна
(Отримано 10 листопада 2009 р.; в остаточному вигляді — 14 березня 2011 р.)

Запропоновано механізм розрахунку абсолютних п'єзооптичних кон-стант кристалів на основі відомих співвідношень Поккельса й експериментально отриманих результатів дослідження впливу одновісних тисків на спектральні й температурні залежності двопроменезаломлення. На прикладі кристалів ТГС із домішкою L-треоніну розраховано дисперсійні та температурні залежності абсолютних п'єзоконстант. Показано, що найбільший внесок у зміни п'єзооптичних констант електрооптичний ефект робить поблизу фазового переходу, а при віддаленні від точки фазового переходу в глибину сеґнетоелектричної фази внесок від електрооптичного ефекту незначний і становить $\sim 13\ldots17\%$.

Ключові слова: кристал, двопроменезаломлення, одновісний тиск, п'єзооптичні константи, фазовий перехід.

PACS number(s): 78.20.H−, 78.20.Fm

I. ВСТУП

Дослідження комбінованих та абсолютних п'єзооптичних коефіцієнтів кристалів має самостійне значення, оскільки дає змогу вивчити один з важливих кристалооптичних параметрів і проаналізувати температурно-спектральну деформацію оптичної індикатриси в полі механічних зусиль. Крім цього, варто звернути увагу на дослідження поведінки п'єзооптичних констант у ділянці фазових переходів (ФП).

П'єзооптичний ефект визначає зміну оптичних властивостей матеріалу — показника заломлення n_i, двопроменезаломлення Δn_i під впливом механічного навантаження σ. П'єзооптичний ефект найзручніше описувати індукованою зміною поляризаційних констант $a_{ij} = 1/n_{ij}^2 = 1/\varepsilon_{ij}$ [1]. Тоді тензорний запис п'єзооптичного і пружнооптичного ефектів має такий вигляд:

$$\Delta a_{ij} = \pi_{ijkl}\sigma_{kl}, \mathrm{i}\Delta a_{ij} = \rho_{ijkl}\chi_{kl}, \tag{1}$$

де Δa_{ij} — зміна поляризаційної константи, π_{ijkl} — п'єзооптичний тензор четвертого рангу, а ρ_{ijkl} — пружнооптичний тензор четвертого ранґу, σ_{kl} — тензор механічного напруження (другого рангу), χ_{kl} — тензор деформації (другого рангу). Оскільки σ_{kl} і χ_{kl} — симетричні тензори, то

$$\Delta a_i = \pi_{im}\sigma_m \mathrm{i}\Delta a_i = \rho_{im}\chi_m. \tag{2}$$

Рівняння оптичної індикатриси недеформованого анізотропного кристала в довільній системі координат записують так:

$$a_{11}^0x^2 + a_{22}^0y^2 + a_{33}^0z^2 + 2a_{12}^0xy + 2a_{12}^0xz + 2a_{23}^0yz = 1. \tag{3}$$

Під впливом механічної напруги σ_m поляризаційні константи a_{ij}^0 змінюються на величину Δa_{ij}:$a_{ij} = a_{ij}^0 + \Delta a_{ij}$ або в матричній формі

$$a_i = a_i^0 + \pi_{im}\sigma_m. \tag{4}$$

Тоді рівняння недеформованої оптичної індикатриси відповідно з (3) і (4) можна записати так:

$$\begin{aligned}(a_1^0 + \pi_{1m}\sigma_m)x^2 + (a_2^0 + \pi_{2m}\sigma_m)y^2 + (a_3^0 + \pi_{3m}\sigma_m)z^2 \\ + (a_4^0 + \pi_{4m}\sigma_m)yz + (a_5^0 + \pi_{5m}\sigma_m)xz \\ + (a_6^0 + \pi_{6m}\sigma_m)xy = 1.\end{aligned} \tag{5}$$

Ці рівняння описують п'єзооптичну зміну поляризаційних констант і, відповідно, показників заломлення. Якщо через δn_{ij} позначити п'єзозміну показників заломлення, а через $\delta\Delta n_i = \delta n_j - \delta n_k$ — двопроменезаломлення, то (4) можна переписати як

$$\Delta a_i = a_i - a_{i0} = \frac{1}{n_i^2} - \frac{1}{n_{i0}^2} = \frac{1}{(n_{i0} + \delta n_i)^2} - \frac{1}{n_{i0}^2} \tag{6}$$

або

$$\delta n_i = -\frac{\pi_{im}\sigma_m n_{i0}^3}{2}. \tag{7}$$

Методики визначення коефіцієнтів різних параметричних ефектів у монокристалах добре відомі [2]. Їх практично без змін застосовують і при вивченні полідоменних кристалів. Абсолютні п'єзооптичні константи кристалів довільної симетрії можна встановити вимірюванням змін показників заломлення при дії механічного навантаження. Застосування з цією метою класичних методів вимірювання показників заломлення (імерсійного й фотографічного методу Обреїмова, методу призми) непридатне, зокрема внаслідок необхідності використовувати малі зразки, складності

створення в них однорідних напружень і їх вимірювання. Важливою є точність визначення показників заломлення $n_i(\sim 10^{-3}-10^{-4})$ та їх зміни під впливом механічних напружень σ_m, що реально становить $\sim 10^{-5}$. У методі призми є великий розкид даних, неоднорідність напружень у призматичному зразку, необхідність вимірювати зміни головних показників заломлення при дії головних напружень на різних зразках, складність вимірювання, доконечність досить якісної обробки поверхонь.

П'єзозміни показників заломлення також вимірюють інтерференційними методами. Зміна різниці ходу між інтерферуючими променями при дії тиску на кристал, розташований в одному з пліч інтерферометра, приводить до змін інтерференційної картини, що складається із контрастних паралельних світлих і темних смуг — максимумів і мінімумів інтерференції. Унаслідок зміщення інтерференційної картини при дії механічного напруження по щілині фотоприймача, останній реєструє зміну інтенсивності світла, аналіз якої дає змогу визначити індуковану різницю оптичних шляхів інтерферуючих променів і п'єзооптичну константу.

Для визначення абсолютних п'єзооптичних констант кристалів також використовують метод півхвильових напружень, якщо механічна міцність кристала дозволяє індукувати різницю оптичних шляхів $\delta\Delta n_k$ між інтерферуючими променями, яка дорівнює одній або декільком півхвилям, що викликає періодичну зміну інтенсивності світла. Півхвильове напруження (σ_{km}) встановлюють за зміною інтенсивності світла I_k на виході інтерферометра від одного екстремального значення до сусіднього, яким відповідає різниця ходу між інтерферуючими променями $\lambda/2$. Використовують таке співвідношення для півхвильового методу визначення абсолютних ПОК:

$$\pi_{il}=\frac{2s_{kl}(n_i-1)}{n_i^3}-\frac{\lambda}{n_i^3\sigma_{km}d_k}. \tag{8}$$

II. МЕТОДИКА ЕКСПЕРИМЕНТУ

Ми запропонували розраховувати абсолютні п'єзооптичні константи, використовуючи експериментально отримані залежності зміни двопроменезаломлення Δn_i під впливом одновісних тисків σ_m уздовж головних кристалофізичних напрямів, а також відомі співвідношення Поккельса [2]:

$$\begin{aligned}
\delta\Delta n_z^x&=\frac{1}{2}(n_x^3\pi_{11}-n_y^3\pi_{21})+s_{13}(n_y-n_x)\\
\delta\Delta n_y^x&=\frac{1}{2}(n_x^3\pi_{11}-n_z^3\pi_{31})+s_{12}(n_z-n_x)\\
\delta\Delta n_x^y&=\frac{1}{2}(n_y^3\pi_{22}-n_z^3\pi_{32})+s_{12}(n_z-n_y)\\
\delta\Delta n_z^y&=\frac{1}{2}(n_y^3\pi_{22}-n_x^3\pi_{12})+s_{23}(n_x-n_y)\\
\delta\Delta n_x^z&=\frac{1}{2}(n_z^3\pi_{33}-n_y^3\pi_{23})+s_{13}(n_y-n_z)\\
\delta\Delta n_y^z&=\frac{1}{2}(n_z^3\pi_{33}-n_x^3\pi_{13})+s_{23}(n_x-n_z)\\
\delta\Delta n_{yz}^x&=\frac{1}{2}n_x^3\pi_{11}-\frac{1}{4}n_{yz}^3(\pi_{21}+\pi_{31})\\
&-\frac{1}{2}(n_x-n_{yz})(s_{12}+s_{13})\\
\delta\Delta n_{xz}^y&=\frac{1}{2}n_y^3\pi_{22}-\frac{1}{4}n_{xz}^3(\pi_{32}+\pi_{12})\\
&-\frac{1}{2}(n_x-n_{yz})(s_{12}+s_{23})\\
\delta\Delta n_{xy}^z&=\frac{1}{2}n_z^3\pi_{33}-\frac{1}{4}n_{xy}^3(\pi_{13}+\pi_{23})\\
&-\frac{1}{2}(n_z-n_{xy})(s_{13}+s_{23}),
\end{aligned} \tag{9}$$

де, наприклад, $\delta\Delta n_z^x$, $\delta\Delta n_z^y$ — зміна двопроменезаломлення в Z-напрямку при одновісному стиску вздовж кристалофізичних осей X, Y; π_{11}, π_{22}, π_{12} і т. д. — абсолютні п'єзооптичні константи; n_x, n_y, n_z — абсолютні значення показників заломлення вздовж головних кристалофізичних напрямків, n_{xy}, n_{xz}, n_{yz} — уздовж діагональних напрямків; s_{12}, s_{23}, s_{13} і т. д. — коефіцієнти пружної податливості).

Прийнято, що:

$$\begin{aligned}
&\delta\Delta n_z^x=\pi_{31}^0;\delta\Delta n_y^x=\pi_{21}^0;\delta\Delta n_z^y=\pi_{32}^0;\\
&\delta\Delta n_x^y=\pi_{12}^0;\delta\Delta n_x^z=\pi_{13}^0;\delta\Delta n_y^z=\pi_{23}^0;\\
&\delta\Delta n_{yz}^x=\frac{1}{2}(\pi_{21}^0+\pi_{31}^0);\\
&\delta\Delta n_{xy}^z=\frac{1}{2}(\pi_{23}^0+\pi_{13}^0);\\
&\delta\Delta n_{xz}^y=\frac{1}{2}(\pi_{12}^0+\pi_{32}^0).
\end{aligned} \tag{10}$$

Перепишемо систему рівнянь (9) так:

$$\begin{aligned}
n_x^3\pi_{11}-n_y^3\pi_{21}&=2(\pi_{31}^0-s_{13}(n_y-n_x))\\
n_x^3\pi_{11}-n_z^3\pi_{31}&=2(\pi_{21}^0-s_{12}(n_z-n_x))\\
n_y^3\pi_{22}-n_z^3\pi_{32}&=2(\pi_{12}^0-s_{12}(n_z-n_y))\\
n_y^3\pi_{22}-n_x^3\pi_{12}&=2(\pi_{32}^0-s_{23}(n_x-n_y))\\
n_z^3\pi_{33}-n_y^3\pi_{23}&=2(\pi_{13}^0-s_{13}(n_y-n_z))\\
n_z^3\pi_{33}-n_x^3\pi_{13}&=2(\pi_{23}^0-s_{23}(n_x-n_z))
\end{aligned}$$

$$n_x^3\pi_{11} - \frac{1}{2}n_{yz}^3(\pi_{21}+\pi_{31}) = 2\pi_{41}^0 + (n_x - n_{yz})(S_{12}+S_{13})$$
$$n_y^3\pi_{22} - \frac{1}{2}n_{xz}^3(\pi_{32}+\pi_{22}) = 2\pi_{52}^0 + (n_y - n_{xz})(S_{12}+s_{23})$$
$$n_z^3\pi_{33} - \frac{1}{2}n_{xy}^3(\pi_{13}+\pi_{23}) = 2\pi_{63}^0 + (n_z - n_{xy})(s_{13}+s_{23}) \qquad (11)$$

Цю систему ми розв'язали методом Ґаусса, визначивши всі 9 абсолютних п'єзооптичних констант.

Спектральні та дисперсійні значення комбінованих п'єзоконстант π_{im}^0 обчислювали за експериментальними змінами двопроменезаломлення під впливом одновісного тиску кристала, поміщеного між схрещеними ніколями в діагональному положенні. У такому разі виникає інтерференційна картина. При одновісному стисканні зразка спостерігають спектральне зміщення інтерференційних смуг, що відповідає зміні товщини та двопроменезаломлення зразка в напрямі поширення світла. Баричну зміну Δn_i при цьому обчислюють із виразу:

$$\Delta n_i(\lambda, \sigma_m) = k \cdot \lambda / d(\sigma_m), \qquad (12)$$

де k — порядок інтерференційного максимуму, а d — товщина зразка по ходу променя.

Таким методом дослідження комбінованих п'єзооптичних констант за вимірюваннями впливу одновісних тисків раніше було визначено комбіновані п'єзооптичні константи низки кристалів: $(NH_4)_2BeF_4$, сеґнетової солі та KDP [3–5]. Однак обчислення абсолютних п'єзооптичних констант кристалів за таким методом зроблено вперше. Раніше цей метод частково було опрацьовано на кристалі сеґнетової солі [6]. І саме для цього кристала протестовано цей метод: установлено досить хороший збіг теоретично розрахованих та експериментально виміряних абсолютних п'єзооптичних констант кристалів сеґнетової солі [2].

III. РЕЗУЛЬТАТИ ТА ЇХ ОБГОВОРЕННЯ

Розгляньмо результати розрахунку абсолютних п'єзооптичних констант за запропонованою методикою на прикладі кристала тригліцинсульфату (ТГС) з домішкою L-треоніну.

ТГС — це класичний сеґнетоелектрик, вище від температури Кюрі $T_c = 49°C$ він належить до центросиметричного класу $2/m$ (просторова група $P2/m$). Нижче від T_c дзеркальна площина зникає і кристал належить до полярної групи 2 (просторова група $P2/1$) [7, 8]. L-треонін — це амінокислота, що відрізняється від гліцину групою C-CH_3(OH). Кристали ТГС з домішкою L-треоніну (LTTГС) ростуть асиметрично щодо b-осі [9]. Внесення домішки L-треоніну послаблює температурну залежність показників заломлення, двопроменезаломлення та термічного розширення кристалів ТГС [10, 11].

На рис. 1 зображено дисперсійні залежності комбінованих п'єзоконстант π_{im}^0 кристалF LTTГС за кімнатної температури. Як видно з рисунка, в досліджуваному спектральному діапазоні п'єзоконстанти π_{im}^0 домішкового кристала мають незначну дисперсію. При тому характер їхньої дисперсії відтворює характер дисперсії двопроменезаломлення $\partial\pi_{im}^0/\partial\lambda < 0$. Найбільше змінюються з довжиною хвилі коефіцієнти π_{23}^0 і π_{21}^0 ($\partial\pi_{23}^0/\partial\lambda \cong \partial\pi_{21}^0/\partial\lambda \cong 1.49{\cdot}10^{-5}$ м^2/Н·нм), хоча дисперсія Δn_y механічно вільного кристала є найменшою.

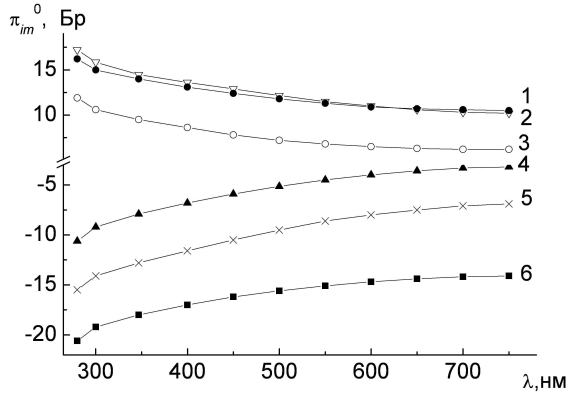

Рис. 1. Спектральні залежності комбінованих п'єзооптичних констант кристалів ТГС з 5% домішкою L-треоніну за кімнатної температури: 1 — π_{23}^0; 2 — π_{12}^0; 3 — π_{31}^0; 4 — π_{21}^0; 5 — π_{32}^0; 6 — π_{13}^0.

Відзначимо рівність п'єзоконстант π_{23}^0 і π_{12}^0: при $\lambda = 628$ нм $\pi_{23}^0 = \pi_{12}^0 = 10.88{\cdot}10^{-12}$м^2/Н. Це означає, що при дії тисків σ_z і σ_y двопроменезаломлення Δn_z і Δn_y будуть рівними між собою, що приведе до зменшення анізотропії оптичної індикатриси домішкового кристала. Оскільки для кристала ТГС виконується співвідношення $n_x > n_z > n_y$, то рівність $\Delta n_z = \Delta n_y$ означатиме усереднення показника заломлення $n_z = (n_x + n_y)/2$.

На рис. 2 зображені дисперсійні залежності абсолютних п'єзооптичних констант π_{im} кристалів LTTГС за кімнатної температури. Як видно, абсолютні п'єзоконстанти π_{im} також мають значну дисперсію $\partial\pi_{im}/\partial\lambda < 0$. Характер дисперсії π_{im} відповідає характереві спектральних змін n_i. Видно, що найбільше з довжиною хвилі змінюються константи π_{11}, π_{21} і π_{31}: $\partial\pi_{im}/\partial\lambda = -0.088$, -0.082 і -0.083 Бр/нм відповідно. Спектральна залежність констант π_{23} і π_{33} незначна: $\partial\pi_{im}/\partial\lambda = 2.75{\times}10^{-2}$ і $2.61{\times}10^{-2}$ Бр/нм відповідно.

На рис. 3 зображено температурні залежності абсолютних п'єзооптичних констант кристалів LTTГС для $\lambda = 500$ нм.

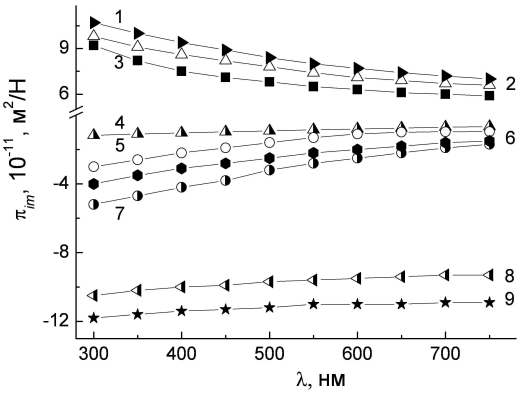

Рис. 2. Дисперсія абсолютних п'єзооптичних констант кристалів ТГС з домішкою L-треоніну за кімнатної температури: 1 — π_{31}; 2 — π_{21}; 3 — π_{11}; 4 — π_{13}; 5 — π_{22}; 6 — π_{32}; 7 — π_{12}; 8 — π_{23}; 9 — π_{33}.

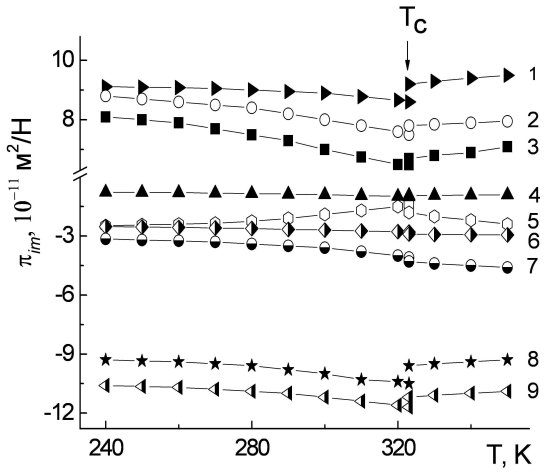

Рис. 3. Температурні залежності абсолютних п'єзооптичних констант кристалів ТГС з домішкою L-треоніну: 1 — π_{31}; 2 — π_{21}; 3 — π_{11}; 4 — π_{13}; 5 — π_{22}; 6 — π_{32}; 7 — π_{12}; 8 — π_{23}; 9 — π_{33}.

Більшість п'єзоконстант π_{im} при наближенні до точки ФП з боку сеґнетоелектричної фази зменшується, а при переході в параелектричну фазу стрибкоподібно зростає і практично не залежить від температури. П'єзоконстанти π_{11}, π_{21} і π_{31} додатні, що відповідає зменшенню показників заломлення n_x, n_y і n_z під впливом напруги σ_x.

П'єзооптичний ефект у кристалах групи ТГС визначається "істинним" п'єзооптичним і вторинним електрооптичним внесками $\partial n_i/\partial P_c$. Електрооптичний внесок зумовлений тим, що, внаслідок залежності спонтанної поляризації від температури і зміщення функції $P_c(T)$ вздовж осі температур при дії одновісного тиску σ_m, значення спонтанної поляризації зміниться на деяку величину ∂P_c, що, своєю чергою, приведе до додаткової електрооптичної зміни показників заломлення:

$$\pi_{im} = 2\frac{\partial n_i}{n_{i0}^3 \partial \sigma_m} = \frac{2}{n_{i0}^3}\left[\left(\frac{\partial n_i}{\partial \sigma_m}\right)_{\text{іст.}} + \frac{\partial n_i}{\partial P_c}\cdot\frac{\partial P_c}{\partial \sigma_m}\right], \quad (13)$$

де $(\partial n_i/\partial \sigma_m)_{\text{іст.}}$ — внесок "істинного" п'єзооптичного ефекту в п'єзозміни показників заломлення.

Для оцінки внеску від електрооптичного ефекту потрібно знати температурну залежність спонтанної поляризації під впливом одновісного напруження і значення баричного зміщення точки ФП.

Значення баричного зміщення точки ФП були отримані при дослідженні впливу одновісного напруження на двопроменезаломлюючі властивості кристалів ТГС з домішкою L-треоніну. Встановлено, що: зміни Δn_i пропорційні до температури, при переході через точку Кюрі змінюється величина похідної $\partial \Delta n_i/\partial T$; одновісні напруження, змінюючи абсолютну величину Δn_i, принципово не змінюють температурної поведінки Δn_i; під впливом тисків зміщується точка ФП.

При дії тисків $\sigma_x = 200$ бар і $\sigma_y = 200$ бар точка ФП зміщується в бік нижчих температур: $T_c^x = 321.7$ К і, тоді як тиск $\sigma_z = 200$ бар зміщує останню в бік вищих температур $T_c^z = 326.6$ К (за відсутності механічного навантаження $T_c = 323$ К). У такому разі температурні коефіцієнти зміщення ФП становлять $\partial T_c/\partial \sigma_x = -0.0065$, $\partial T_c/\partial \sigma_y = -0.0081$ і $\partial T_c/\partial \sigma_z = +0.0179$ К/бар. "Сумарний" (гідростатичний) коефіцієнт зміщень точки ФП під впливом одновісних тисків становить: $\partial T_c/\partial p = \sum_{i=1}^{3} \partial T_c/\partial \sigma_i = +0.0033$ К/бар.

З одного боку, ці результати добре корелюють із відповідними даними для чистого кристала ТГС [12], де знайдено такі значення: $\partial T_c/\partial \sigma_x = -7$, $\partial T_c/\partial \sigma_y = -8.5$ і $\partial T_c/\partial \sigma_z = 20$ К/кбар. Отримані коефіцієнти є дещо меншими, що підтверджує зростання жорсткості кристалів ТГС при внесенні домішок. У процесі росту кристала з домішкою L-треоніну домішка входить у кристалічну структуру кристала ТГС, заміщаючи один гліцин. Гліцини I-III є планарними в парафазі, тоді як у сеґнетофазі гліцин I стає непланарним. Коли молекула L-треоніну заміщає гліцин I, спонтанна поляризація P_c стає фіксованою і виникає поле зміщення, яке змінює всі діелектричні параметри кристала, а також зміщує точку ФП. Заміщення гліцину L-треоніном ймовірніше, коли кристал вирощується в сеґнетофазі. Крім того, значне зміщення точки ФП в бік високих температур, очевидно, зумовлено дією одновісного тиску на сеґнетоелектричні домени, які в кристалі ТГС являють собою трубки з овальним, частіше всього лінзоподібним перерізом, витягнутим уздовж напрямку, перпендикулярного до осі c. Менші значення цих величин у кристалі LTTГС порівняно з чистим кристалом зумовлені тим, що в домішкових кристалах домени мали великі розміри, але неправильну форму й розмиті краї і їхня концентрація зменшується в процесі спонтанного старіння зразків.

Ці результати якісно добре узгоджуються з дослідженням впливу одновісного тиску на параметри петель гістерезису чистого кристала ТГС [13, 14]. Установлено, що тиски σ_{11} і σ_{22} приводять до зростання спонтанної поляризації й коерцетивного поля, а тиск σ_{33} — до їхнього зменшення. Автори припустили, що кристал ТГС є не лише сеґнетоелектриком, але й фероеластоелектриком. Одночасне прикладання елект-

ричного й механічного полів до таких кристалів приводить до його монодоменізації, тобто встановлення якогось одного орієнтуючого стану. При тому тиски σ_{11} і σ_{22} сприяють руху доменів, а тиск σ_{33} — утруднює його.

Під час розрахунків ураховано факт столості форми кривої $P_c(T)$ під впливом σ_m, що узгоджується з відповідними дослідженнями спонтанної поляризації кристалів ТГС під впливом гідростатичного тиску [15]: тиск до 6 кбар не впливає на молекулярний механізм поляризації кристалів ТГС, а лише зміщує точку Кюрі за рахунок збільшення кількості диполів в одиниці об'єму. Ці залежності дають змогу визначити прирости спонтанної поляризації δP_c і δP_c^2 (оскільки спонтанний електрооптичний ефект у кристалах ТГС є квадратичним) при відповідних тисках σ_m. Визначивши величини $d\Delta n_i/dP_c^2$ та використавши знайдені величини δP_c^2, розрахували прирости вторинного електрооптичного ефекту в зміни двопроменезаломлення $\delta\Delta n_i = d\Delta n_i/dP_c^2 \cdot \delta P_c^2$.

Із формули (13) знайдено, що найбільший внесок у зміни п'єзооптичних констант π_{im} електрооптичний ефект робить у ділянці ФП. Із віддаленням від точки ФП в глибину сеґнетоелектричної фази внесок від електрооптичного ефекту незначний і становить $\sim 13\ldots17\%$. Ці результати добре узгоджуються з результатами, отриманими як різниця між π_{im} у сеґнетофазі й екстрапольованими даними з параелектричної фази.

Порівняти температурну поведінку $\pi_{im}(T)$ чистих і домішкових кристалів неможливо через відсутність значень абсолютних п'єзоконстант $\pi_{im}(T)$ для чистих кристалів ТГС. Але порівняння поведінки комбінованих п'єзоконстант $\pi_{im}^0(T)$ цих кристалів дає підстави стверджувати, що при ФП величина стрибкоподібних змін п'єзоконстант (розривання функції $\pi_{im}^0(T)$) домішкових кристалів значно менша. Це зумовлено тим, що доданок $dP_c/d\sigma_m$, пропорційний до δP_c, для домішкових кристалів менший, ніж для чистих кристалів за рахунок менших значень $dT_c/d\sigma_m$ і меншої спонтанної поляризації.

Анізотропія коефіцієнтів $\delta\pi_{im}^0$ домішкових кристалів визначається, в основному, різними за величиною коефіцієнтами $dT_c/d\sigma_m$. Так, для чистих і домішкових кристалів $\delta\pi_{32}^0 > \delta\pi_{31}^0$, тому що $\left|dT_c/d\sigma_2\right| > \left|dT_c/d\sigma_1\right|$, а $\delta\pi_{23}^0 > \delta\pi_{21}^0$, тому що $\left|dT_c/d\sigma_3\right| > \left|dT_c/d\sigma_1\right|$. Зрозуміло, що анізотропія коефіцієнтів $\delta\pi_{im}^0$ при однакових m і різних визначається анізотропією коефіцієнтів спонтанного електрооптичного ефекту $d\Delta n_i/dP_c^2$: нерівність $\delta\pi_{32}^0 > \delta\pi_{31}^0$ відповідає $\left|d\Delta n_2/dP_c^2\right| > \left|d\Delta n_1/dP_c^2\right|$, а $\delta\pi_{23}^0 > \delta\pi_{21}^0$ — $\left|d\Delta n_3/dP_c^2\right| > \left|d\Delta n_1/dP_c^2\right|$.

Така якісна відповідність коефіцієнтів $\delta\pi_{im}^0$, $dT_c/d\sigma_m$ і $d\Delta n_i/dP_c^2$ підтверджує припущення, що внесок вторинного електрооптичного ефекту в аномаліїї π_{im}^0 і π_{im} достатньо суттєвий порівняно з внеском аномалій пружних констант.

Варто відзначити, що для домішкових кристалів ТГС температурні коефіцієнти змін п'єзоконстант у параелектричній і сеґнетофазі далеко від точки Кюрі ($T < T_c$ — 25 K) є незначними і приблизно однаковими: $d\pi_{im}/dT \sim 7\ldots15{\cdot}10^{-14}$м^2 / Н·К, а самі п'єзоконстанти є слабо анізотропними. І лише з наближенням до T_c вторинний електрооптичний ефект і, можливо, аномалії пружних констант, відомості про які, на жаль, відсутні, приводять до значної анізотропії п'єзоконстант.

Отже, й цій статті запропоновано алґоритм розрахунку абсолютних п'єзооптичних констант кристалів, на основі відомих співвідношень Поккельса й експериментально отриманих результатів дослідження впливу одновісних тисків на спектральні й температурні залежності двопроменезаломлення. На прикладі кристалів ТГС із домішкою L-треоніну розраховано дисперсійні й температурні залежності абсолютних п'єзоконстант. Показано, що найбільший внесок у зміни п'єзооптичних констант електрооптичний ефект робить у ділянці ФП, а з віддаленням від точки ФП в глибину сеґнетоелектричної фази внесок від електрооптичного ефекту є незначним і становить $\sim 13\ldots17\%$.

[1] Дж. Най, *Физические свойства кристаллов* (Мир, Москва, 1967), с. 386.

[2] Т. Нарасимхамурти, *Фотоупругие и электрооптические свойства кристаллов* (Москва, Мир, 1984).

[3] V. Yo. Stadnyk, M. O. Romanyuk, Phys. Status Solidi (a) **158**, 289 (1996).

[4] V. Yo. Stadnyk, M. O. Romanyuk, V. Yu. Kurlyak, V. F. Vachulovych, Ukr. J. Phys. Opt. **1**, 19 (2000).

[5] М. О. Романюк, В. Й. Стадник, М. М. Романюк, Журн. фіз. досл. **7**, 449 (2003).

[6] V. Yo. Stadnyk, Crystallography Rep. **45**, 833 (2000).

[7] Г. А. Смоленский, В. А. Боков, В. А. Исупов, Н. Н. Крайник, Р. Е. Пасынков, М. С. Шур *Сегнетоэлектрики и антисегнетоэлектрики* (Наука, Ленинград, 1971).

[8] Г. А. Смоленский, *Физика сегнетоэлектрических явлений* (Наука, Ленинград, 1985).

[9] J. Stankowska, A. Czarnecka, S. Mielcarek, Ferroelectrics **172**, 221 (1995).

[10] В. Й. Стадник, В. І. Кардаш, М. О. Романюк, Я. Станковська, Укр. фіз. журн. **41**, 940 (1996).

[11] В. И. Стадник, Н. А. Романюк, В. И. Кардаш, Кристаллография **41**, 1146 (1996).

[12] Н. А. Романюк, Б. Г. Мыцык, В. М. Варикаш, Физ. тверд. тела **25**, 1670 (1983).

[13] Е. А. Кафадарова, И. Н. Поландов, В. М. Петров, А. Н. Попов, Физ. тверд. тела **21**, 620 (1979).

[14] Е. Ф. Дудник, В. М. Дуда, А. И. Кушнарев, Физ. тверд. тела **42**, 133 (2000).

[15] K. Imai, J. Phys. Soc. Jpn **38**, 836 (1979).

[16] J. Stankowska, S. Mielcarek, A. Czarnecka, M. Musial, Ferroelectrics **158**, 169 (1994).

[17] J. Stankowska, A. Czarnecka, G. Kwitkowska, Ferroelectrics **108**, 325 (1990).

THE CALCULATION OF ABSOLUTE PIEZOOPTIC CONSTANTS OF TGS CRYSTALS WITH L-TREONINE ADMIXTURE

V. Yo. Stadnyk, M. O. Romanyuk, Yu. I. Kiryk
Ivan Franko National University of Lviv,
8, Kyryla i Mefodija St., Lviv, UA–79005, Ukraine
e-mail: vasylstadnyk@ukr.net

The mechanism of calculation of the absolute piezooptic constants of crystals using the Pokkel's correlations and experimental results of measuring the uniaxial pressure action upon the spectral and temperature dependences of birefringence were proposed. The dispersion and temperature dependences of absolute piezooptic constants of TGS crystals with L-threonine admixture were calculated. It was shown that the electrooptic effect makes the most contribution to the piezooptic constant changes near the phase transition region. The electrooptic effect contribution becomes insignificant ($\sim$13...17%), if the distance from phase transition point to the depth of ferroelectric phase increases.