

УДК 537.226.82 : 621.376.6
 © 1992

ТЕРМОПЬЕЗОЭЛЕКТРИЧЕСТВО В НЕЦЕНТРОСИММЕТРИЧНЫХ КРИСТАЛЛАХ

Л. П. Переверзева, Ю. М. Поплашко, С. К. Скляренко,
 А. Г. Чепилко, В. Ф. Заворотный

Вводится представление о термопьезоэлектричестве (ТПЭЛ), индуцированном однородным нагревом ацентричного кристалла, в определенном срезе которого искусственно ограничивается часть термических деформаций. Получены расчетные соотношения, позволяющие определить ТПЭЛ-коэффициент (аналогичный пироккоэффициенту) для различных классов ацентричных кристаллов по компонентам тензоров пьезомодуля, упругой податливости и термического расширения. Термопьезоэлектричество наблюдалось экспериментально в кристаллах SiO_2 , $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$, $\text{Bi}_{12}\text{GeO}_{20}$ и Y-срезе LiNbO_3 .

Пироэлектричество определяется как изменение спонтанной поляризованности P_s механически и электрически свободного кристалла при однородном изменении его температуры T . Это изменение характеризуется пироккоэффициентом $p^{X,E} = \partial P_s / \partial T$, индексы указывают на постоянство компонент электрического поля E_i и механического напряжения X_m при определении p . Из термодинамического анализа пироэффекта [1] следует его феноменологическое разделение на первичный и вторичный с соответствующими пироккоэффициентами $p^{(1)}$ и $p^{(2)}$

$$p_i^{X,E} = p_i^{(1)} + p_i^{(2)} = p_i^x + d_{im}^T c_{mn}^X \alpha_n^{X,E}, \quad (1)$$

$$i = 1, 2, 3; \quad m, n = 1, 2, \dots 6.$$

Вклад первичного пироэффекта в принципе можно найти при исследовании зажатого кристалла, деформации которого $x_n = 0$, т. е. $p_i^{(1)} = p_i^x$. Вклад вторичного пироэффекта соответствует разности пироккоэффициентов свободного и зажатого кристалла $p_i^{(2)} = p_i^{X,E} - p_i^x$ и может быть рассчитан по формуле (1) при известных компонентах пьезомодуля $\alpha_n^{X,E}$, упругой жесткости $c_{mn}^{X,E}$ и коэффициента термического расширения $\alpha_n^{X,E}$. В линейных пироэлектриках $p = 10^{-7} \div 10^{-5}$, а в сегнетоэлектриках $p = 10^{-5} \div 10^{-3}$ Кл·м⁻²·К⁻¹.

Требования симметрии разрешают как первичный, так и вторичный пироэффекты только в 10 классах кристаллов из 20 пьезоэлектрических классов. В пироэлектриках существует «особенное полярное направление», вдоль которого пироотклик максимален. В остальных 10 пьезо-, но не пироэлектрических классах кристаллов любое скалярное (однородное) воздействие, в том числе и температурное, не может привести к векторному (электрическому) отклику при однородных граничных условиях, т. е. если кристалл полностью свободен, полностью механически зажат и т. п. Для возбуждения электрического отклика в пьезоэлектриках необходимо либо неоднородное воздействие, либо неоднородные граничные условия.

Действительно, давно известно, что неоднородное термическое воздействие вызывает в пьезоэлектриках полярный отклик. В ранних исследованиях это явление называлось «актиноэлектричеством», позднее Кэди [2] определил реакцию ацентричного кристалла на неравномерный нагрев как «третичное пьезоэлектричество». Этот термин стал общепринятым, хотя только третичный эффект был ясно определен [3]: температурное изменение поляризованности пьезоэлектрика индуцируется термическими напряжениями $dP_i = d_{im} c_{mn} \times (x_n - \alpha_n dT)$. Тем не менее по-прежнему предполагалось, что за третичный эффект ответствен неоднородный нагрев, хотя и было показано, что однородный градиент температуры не может привести к существенному пироотклику, поскольку кристалл деформируется и напряжения не возникают [3].

В данной работе показано, что и при однородном тепловом возбуждении пьезоэлектрика (когда $\text{grad } T = 0$) можно получить полярный отклик, если создать условия, исключаяющие часть термических деформаций. В таком случае разрешенная термодиформация индуцирует пьезоэлектрическую поляризацию, которая из-за частичного зажатия кристалла не может быть скомпенсирована. При этом состояние кристалла является одинаковым во всех его точках — однородно-напряженным. В эксперименте анизотропное ограничение термических деформаций может быть реализовано различными способами: искусственным закреплением тонкой пьезоэлектрической пластинки на жесткой подложке, естественным ограничением радиальных деформаций тонкого диска выше частоты пьезорезонанса и др.

1. Определение эффекта

Термопьезоэлектрический эффект определяется как индуцированная механическими напряжениями поляризованность электрически свободного, но механически частично зажатого пьезоэлектрика при однородном тепловом воздействии. Частичное зажатие обеспечивается неоднородными граничными условиями, анизотропно ограничивающими термические деформации ацентричного кристалла, вследствие чего он однородно, но анизотропно напряжен.

Термопьезоэлектричество максимально проявляется в направлении какой-либо из полярных пьезоэлектрических осей ацентричного кристалла, которая под воздействием термоиндуцированных напряжений трансформируется в соответствии с принципом Кюри в особенную полярную ось. Таким образом, пьезоэлектрик при определенных граничных условиях проявляет себя как пироэлектрик, а в пироэлектрике можно индуцировать полярный отклик в направлении, отличающемся от направления особенной полярной оси свободного кристалла.

Характеризующий ТПЭЛ эффективный пирокоэффициент зависит как от пьезоэлектрических, упругих и тепловых свойств кристалла, так и от способа ограничения термодиформаций

$$r_{\text{ТПЭЛ}} = p_k^{X_k, E} = d_{km}^T \lambda_m^*, \quad (2)$$

где λ_m^* — эффективный термоупругий коэффициент частично зажатого кристалла. Индекс при p_k указывает на то, что лишь часть компонент тензора упругих напряжений X_k равна нулю (в отличие от формулы (1)). Для различных пьезоэлектриков $r_{\text{ТПЭЛ}} = 10^{-6} \div 10^{-4}$ Кл·м⁻²·К⁻¹, т. е. сравним по величине с пирокоэффициентом сегнетоэлектриков. Размерность $r_{\text{ТПЭЛ}}$ соответствует размерности $p_k^{X_k, E}$, поскольку частичное зажатие превращает пьезоэлектрик в искусственный пироэлектрик. Первоначально авторы [4, 5] классифицировали данный эффект как «вторичный» ввиду подобия способов расчета $r_{\text{ТПЭЛ}}$ и $p^{(2)}$,

однако это определение неверно, поскольку вторичный пирозффект проявляется в свободных кристаллах, а ТПЭЛ в частично зажатых.

Представляет интерес сравнение термопьезоэлектрического эффекта с третичным пирозффектом. В соответствии с определением [3] третичный эффект, как и ТПЭЛ, обусловлен температурными напряжениями в пьезоэлектриках. Однако в случае третичного пирозффекта напряжения эти вызваны пространственно-распределенной неоднородностью нагрева кристалла (причем даже однородный градиент температуры еще не приводит к третичному пирозффекту [3]). Термопьезоэлектричество, как и традиционный пирозффект, имеет место при однородном нагреве кристалла, но обусловлено неоднородными граничными условиями, разрешающими только определенные термодформации.

Во всех случаях индуцированное в пьезоэлектриках пирозлектричество можно рассматривать как следствие суперпозиции симметрий кристалла и воздействия на него. Однако в работах по третичному пирозффекту симметрия воздействия на кристалл четко не определялась, как и не всегда определялись четко граничные условия (что может приводить, как в [6], к большим погрешностям). Экспериментальное исследование третичного эффекта, например, методом локального лазерного нагрева пьезоэлектрика [7], также не способствует четкому определению симметрии воздействия и сопоставлению ее с симметрией анизотропного кристалла. Напротив, в приведенном ниже анализе ТПЭЛ эффекта симметрия воздействия задается однозначно — ограничением всех термодформаций кристалла, кроме одной — вдоль пьезоэлектрической оси.

Наиболее точным (но не кратким) определением описываемого в данной работе физического эффекта было бы «пирозлектричество в частично зажатых пьезоэлектриках», но и используемый термин «термопьезоэлектричество» кратко и достаточно ясно указывает на физический механизм обсуждаемого явления.

2. Теоретическое описание

Формула (1) получена для пирозкоэффициента кристаллов с особенным полярным направлением из термодинамического потенциала Гиббса [1], когда независимыми переменными являются X , E и T , а зависимыми — деформация x , электрическая индукция D и энтропия S . В этом случае уравнения состояния пирозлектрика записываются следующим образом:

$$\begin{aligned} dx_m &= s_{mn}^{E,T} dX_n + d_{mi}^T dE_i + \alpha_m^E dT, \\ dD_j &= d_{jm}^T dX_m + \epsilon_{ij}^X dE_i + p_j^X dT, \\ dS &= \alpha_m^E dx_m + p_j^X dE_j + C^{E,T} dT/T, \end{aligned} \quad (3)$$

где $s_{mn}^{E,T}$ — тензор упругой податливости и $C^{E,T}$ — теплоемкость. Для пьезоэлектриков в наиболее простой экспериментальной ситуации, когда кристалл электрически свободен (т. е. короткозамкнут, $E=0$ и $D=P$), и в отсутствие спонтанной поляризации $p_j^X=0$ уравнения (3) имеют вид

$$\begin{aligned} dx_m &= s_{mn}^{E,T} dX_n + \alpha_m^X dT, \\ dP_i &= d_{in}^T dX_n, \\ dS &= \alpha_m^E dx_m + C^{E,T} dT/T. \end{aligned} \quad (4)$$

Верхние индексы, обозначающие термодинамическое состояние кристалла, при дальнейшем анализе опускаются; изменение энтропии не рассматривается. Поскольку предполагается постоянство E и T , то для частично зажатых пьезоэлектриков рассчитывается изотермический токовый «пирозкоэффициент» $p_{\text{тпэл}} = \partial P_i / \partial T$.

Уравнения (4) конкретизируются при задании граничных условий. Предположим, что бесконечная тонкая пьезоэлектрическая пластинка идеально закреплена на толстой жесткой подложке с коэффициентом термического расширения $\alpha_n=0$. Толщина этой пластинки h должна быть существенно меньше глубины проникновения в нее температурной волны $l=(2a/\omega)^{1/2}$, где a — температуропроводность пьезоэлектрика, ω — частота модуляции теплового потока. Вследствие этого градиентом температуры в пьезоэлектрике можно пренебречь, а подложка под действием температурных волн не будет изгибаться при $\alpha_n=0$. В результате тангенциальные деформации пьезоэлектрика полностью подавляются, а разрешенной остается только деформация по толщине пластины в сторону свободной поверхности. Сдвиговые деформации однородных тепловых потоком не возбуждаются, причем большая («бесконечная») площадь пластинки позволяет пренебречь в данной модели краевыми эффектами. Нормаль к пластине ориентирована по одному из полярных направлений ацентричного кристалла, которое вследствие ограничения планарных деформаций пьезоэлектрика становится особым полярным в соответствии с принципом суперпозиции Кюри.

Решения уравнений (4) зависят от симметрии кристалла. В качестве примера рассмотрим класс 32, к которому принадлежит хорошо изученный пьезоэлектрик — кварц. В основной установке кристаллы класса 32 характеризуются продольным пьезомодулем d_{11} , поперечным модулем $d_{12}=-d_{11}$ и сдвиговыми модулями d_{14} , d_{25} и d_{26} . Предположим, что тонкая пластинка вырезается перпендикулярно оси 1 (X-срез или срез Кюри). Жесткая подложка запрещает деформации в плоскости среза $dx_2=dx_3=0$, так что разрешена только деформация dx_1 (сдвиговые деформации, согласно модели, не возбуждаются). В рассматриваемом случае $E_1=0$ и $X_1=0$, $\alpha_1=\alpha_2\neq\alpha_3$, $s_{11}=s_{12}$, $s_{13}=s_{33}$, электроды покрывают поверхности (100). При этих условиях уравнения (4) принимают вид

$$\begin{aligned} dx_1 &= s_{11}dX_2 + s_{12}dX_3 + \alpha_1dT, \\ dx_2 &= s_{22}dX_2 + s_{23}dX_3 + \alpha_2dT = 0, \\ dx_3 &= s_{32}dX_2 + s_{33}dX_3 + \alpha_3dT = 0, \\ dP_1 &= d_{12}dX_2. \end{aligned} \quad (5)$$

Из уравнений (5) следует выражение для пирокoeffициента частично зажато-го кристалла класса 32

$$p_1 = dP_1/dT = d_{11}(\alpha_1s_{33} - \alpha_3s_{13})(s_{11}s_{33} - s_{13}^2)^{-1}. \quad (6)$$

Для кварцевой пластинки при 300 К $p_1=2.5$ мкКл·м⁻²·К⁻¹. Для других кристаллов класса 32 расчет дает: для берлинита — 5.7, каломели — 8.7, теллура $p_1\approx 10$ мкКл·м⁻²·К⁻¹.

В тригональных кристаллах полярного класса 3m термопьезоэлектрический отклик наблюдается в направлении [010], перпендикулярном особенной полярной оси [001]. Формула расчета «пирокoeffициента» p_2 аналогична (6), но вместо d_{11} необходимо записать d_{22} . В разных кристаллах класса 3m получено: прустит $p_2\sim 10$, пираргирит ~ 15 , танталат лития ~ 20 и ниобат лития $p_2\approx 40$ мкКл·м⁻²·К⁻¹. Отметим, что по порядку величины термопьезоэлектрический отклик сравним с традиционным пирооткликом в этих кристаллах: в ниобате лития, например, $p_3\approx 50$ мкКл·м⁻²·К⁻¹.

В случае анизотропного ограничения термдеформаций ТПЭЛ имеет место в любом пьезоэлектрике, однако для анализа этого эффекта не всегда можно использовать стандартные установки кристаллов. Например, для класса 23, к которому относится германат висмута, полярным направлением является [111], и максимальный ТПЭЛ эффект наблюдается в этом направлении, причем

$$p_{[111]} = 2\sqrt{3}ad_{14}(4s_{11} + 8s_{12} + s_{44})^{-1}. \quad (7)$$

В кубическом пьезоэлектрике $\text{Bi}_{12}\text{GeO}_{20}$ при 300 К $p_{[111]} \approx 30$ мкКл·м⁻²·К⁻¹.

В кристаллах класса $\bar{4}2m$, к которым относятся пьезоэлектрики KDP и ADP, для расчета ТПЭЛ эффекта также нужно изменить стандартную установку, например, поворотом осей 1 и 2 вокруг оси 3 на угол $\pi/4$. В этом случае пьезоэлемент целесообразно выбрать не в виде тонкой пластинки, а в виде длинного прямоугольного стержня, вытянутого вдоль одной из новых осей 1' или 2' с электродами, нанесенными на поверхности пьезоэлемента, перпендикулярные оси 3' = 3. Запрет на продольную деформацию стержня позволяет из уравнений (4) получить выражение для «пирокоэффициента»

$$p_3 = 2d_{36}\alpha_1(2s_{11} + 2s_{12} + s_{66})^{-1}. \quad (8)$$

Расчетные значения p_3 для кристаллов ADP или KDP при 300 К равны соответственно примерно 17 и 6 мкКл·м⁻²·К⁻¹.

Величина пироэлектрического отклика в частично зажатых пьезоэлектриках зависит не только от ориентации пьезоэлемента, но и от его формы. Например, для прямоугольного длинного стержня из кристалла кварца (класс 32) «пирокоэффициент» может быть определен из более простого, чем формула (6), соотношения $p_1 = d_{11}\alpha_1 S_{11}^{-1}$. Предполагается, что стержень вытянут вдоль оси 2, а электроды покрывают поверхности, перпендикулярные оси 1; при этом $p_1 \approx \approx 2.4$ мкКл·м⁻²·К⁻¹.

Ограничение термодформаций длинного стержня может быть реализовано на частоте модуляции теплового потока, превышающей частоту продольного электромеханического резонанса ω_L . Динамический «пироотклик» имеет место в интервале частот $\omega_L \leq \omega \leq \omega_T$, где ω_T — резонансная частота толщинных колебаний диска или стержня [4]. В области пьезорезонансов «пироэлектрический отклик» усиливается в Q_m раз, т. е. пропорционально механической добротности анизотропного резонатора с электродами и контактными проволочками.

Высокочастотный пироотклик можно получить и в тонкой пьезоэлектрической пластинке, которую в этом случае не нужно закреплять на подложке. «Бесконечная» пластинка имитируется тонким диском, где ограничение планарных деформаций наступает выше частоты радиального пьезорезонанса ω_L , обуславливая ТПЭЛ отклик до частот высших мод акустических резонансов ω_T, n . Описание высокочастотного пироотклика в условиях частичного зажатия и резонансов усложняется по сравнению с квазистатическим. Эта задача, известная в теории пьезорезонаторов, решалась в работах [8-10]. В итоге, если не учитывать потери, нелинейность и высшие гармоники акустических колебаний резонаторов, динамический ТПЭЛ отклик описывается выражением $p_k f(\omega)$, где p_k — коэффициент, зависящий от симметрии пьезоэлектрика и геометрии пьезорезонатора (формулы (6) — (8) определяют p_k для диска и стержня). Наиболее простой вид частотной функции [10]

$$f(\omega) = 1 - \frac{2\omega_0}{\pi\omega} \operatorname{tg} \frac{\pi\omega}{2\omega_0}, \quad (9)$$

где ω — частота модуляции теплового потока, ω_0 — резонансная частота колебаний пьезоэлемента (продольных или поперечных). В низкочастотном пределе, т. е. в случае свободного кристалла, ТПЭЛ отклик отсутствует, а в области частот $\omega \rightarrow \omega_0$ резонансно возрастает.

Термопьезоэлектричество исследовалось нами как в квазистатическом, так и в динамическом случаях. Разработан высокочувствительный метод измерения, в значительной степени соответствующий граничным условиям, описанным выше в связи с уравнениями (4) и (5). В квазистатическом методе величина пироэлектрического коэффициента определялась по времени заряда эталонного конденсатора пироэлектрическим током. Электронная схема с термопреобразователем Пельтье обеспечивала линейность зависимости температуры образца от времени и автоматическое периодическое переключение режима нагрева—охлаждение таким образом, чтобы амплитуда колебаний температуры образца не превышала десятых долей градуса. Этим методом исследовалась весьма низкая пироактивность в условиях нулевого напряжения на образце и при частотах сканирования температуры порядка 0.01 Гц.

Исследовались кварцевые пластинки X-среза толщиной 100 мкм и площадью около 1 см² с напыленными электродами (медь с подслоем хрома). Пластика наклеивалась на подложку из кварцевого стекла толщиной 1 мм ($\alpha_n = 0.5 \cdot 10^{-6}$ К). Условия квазистатичности удовлетворялись благодаря низкой частоте сканирования температуры, при которой градиент температуры в образце не превышал 1 % от амплитуды колебаний температуры (коэффициент термодиффузии кварца $a_1 = 3.3 \cdot 10^{-6}$ м²·с⁻¹).

Измеренный пирокоэффициент кварца на аморфной кварцевой подложке оказался равным 1.7 мкКл·м⁻²·К⁻¹. Заниженное по сравнению с расчетным значение p_1 может быть обусловлено неидеально жесткой связью образца с подложкой через эпоксидный клей и неучтенными краевыми эффектами.

Экспериментальная установка по исследованию динамического пироотклика частично закрытых пьезоэлектриков состояла из лазера ЛГН-215 мощностью 50 мВт, оптического затвора МЛ-3, используемого для модуляции излучения на частотах 10³—10⁶ Гц, и измерителя «пироотклика» — селективного вольтметра В6-10. Из кварца, германосилленита и ниобата лития вырезались тонкие диски (диаметром 3.5 и толщиной 0.1 мм), а образцы из кристаллов ADP изготавливались в виде прямоугольных стержней размерами 10×1.5×0.4 мм. Точность ориентации и обработка образцов проводились по оптическим стандартам, электроды наносились на плоскости дисков и боковые поверхности стержней, к ним припаивались тонкие гибкие выводы в местах минимальных упругих деформаций. Образцы свободно подвешивались и освещались в торец модулированным лучом лазера. Поскольку коэффициент оптического поглощения исследованных кристаллов на длине волны порядка 0.6 мкм относительно невелик, в эксперименте обеспечивалось объемное и практически однородное поглощение теплоты образцами.

Как и следовало ожидать, при низкой частоте модуляции лазерного излучения «пироотклик» отсутствовал. По мере повышения частоты модуляции и приближения к частоте ω_L (первой моде радиальных колебаний диска или первой моде продольных колебаний стержня) появлялся и резко возрастал с частотой пиросигнал, достигая максимума в окрестности ω_L . (Резонанс толщинных колебаний при $\omega = \omega_T$ в эксперименте не достигался). При дальнейшем повышении частоты, на фоне «пьедестала», наблюдалась серия резонансных всплесков пироотклика при частотах, соответствующих высшим модам продольных или радиальных колебаний пьезоэлементов [6].

Для кварцевых дисков $\omega_L \approx 740$ кГц; для дисков из германосилленита первый максимум наблюдался при $\omega_L \approx 450$ кГц, а затем отмечались максимумы отклика, убывающие по интенсивности, на частотах 600 и 700 кГц. В дисках из ниобата лития, вырезанных перпендикулярно направлению [010], на фоне «пьедестала» наблюдался резкий максимум пироотклика на частоте 930 кГц. В стержнях из кристаллов ADP динамический пироотклик начинался с макси-

муму на частоте $\omega_L = 180$ кГц с последующими возрастающими по амплитуде резонансами на частотах около 380, 500 и 600 кГц. Было исследовано по 5—7 образцов перечисленных кристаллов; в различных образцах интенсивность максимумов пиротоклика различалась в пределах 50 %, а их частота — в пределах 10 %. Контрольному исследованию подвергались также образцы Y- и Z-срезов кварца, а также X- и Z-срезов ниобата лития. Как и следовало ожидать, пиротоклик имел место только в контрольном образце Z-среза ниобата лития (в стандартном пьезоэлектрическом срезе этого кристалла). Интенсивность этого отклика заметно уступала ТПЭЛ отклику в Y-срезе. Расчетные значения p_k , полученные из формул (6)—(8), согласуются с экспериментальными данными в области «пьедестала» в пределах 50 %.

На высоких частотах 0.1—1.5 МГц «пьезоэлектрическая» чувствительность пьезоэлектриков в 10^3 — 10^4 раз превосходит пьезочувствительность сегнетоэлектриков типа ТГС и составляет на резонансной частоте около 0.1 В/Вт при характеристике шумов NEP порядка $5 \cdot 10^{-7}$ Вт·Гц $^{-1}$. Чувствительность пьезоэлектриков на этих частотах около 10^{-5} В/Вт при $NEP \approx 5 \cdot 10^{-3}$ Вт·Гц $^{-1/2}$.

Таким образом, проведенные исследования указывают на перспективность применения пьезоэлектриков в качестве «искусственных пьезоэлектриков» для высокочастотных приемников излучения.

Авторы признательны А. К. Таганцеву за обсуждение работы.

Список литературы

- [1] Най Дж. Физические свойства кристаллов. М.: Мир, 1967. 380 с.
- [2] Кэди У. Пьезоэлектричество и его практическое применение. М.: ИЛ, 1949. 717 с.
- [3] Нуриева К. М., Таганцев А. К. // Кристаллография. 1987. Т. 32. № 3. С. 772—775.
- [4] Переверзева Л. П., Поплавко Ю. М. // Сегнетоэлектрики. Материалы конференции. Минск, 1990. С. 9—23.
- [5] Переверзева Л. П., Поплавко Ю. М., Скляренко С. К., Чешилко А. Г. // Письма в ЖЭТФ. 1990. Т. 52. № 3. С. 820—822.
- [6] Косоротов В. Ф., Кременчугский Л. С., Леваш Л. В. и др. // ФТТ. 1984. Т. 26. № 3. С. 888—890.
- [7] Schein L. B., Cressman P. J., Cross L. E. // Ferroelectrics. 1979. V. 22. P. 937—943.
- [8] Glass A. M., Abrams R. L. // J. Appl. Phys. 1970. V. 41. N 11. P. 4455—4459.
- [9] Переверзева Л. П., Бондаренко Ю. М., Поплавко Ю. М. // Изв. вузов, радиоэлектроника. 1990. Т. 33. № 10. С. 19—24.
- [10] Бондаренко Ю. Н., Переверзева Л. П., Поплавко Ю. М. // Тр. Всес. конф. «Реальная структура и свойства ацентричных кристаллов». Александров, ВНИИСИМС, 1990. Ч. 1. С. 29—41.

Институт физики АН Украины
Киев

Поступило в Редакцию
7 февраля 1991 г.
В окончательной редакции
6 сентября 1991 г.