

## Релаксация пьезооптического двулучепреломления в кристаллах триглицинсульфата

© Н.М. Демьянишин, Б.Г. Мыцык

Львовский центр Института космических исследований Национальной академии наук Украины и Национального космического агентства Украины, 79000 Львов, Украина

E-mail: mytskyk@mail.lviv.ua

(Поступила в Редакцию 16 апреля 2001 г.)

На примере сегнетоэлектрических кристаллов триглицинсульфата рассматривается эффект фотоупругой релаксации. Описаны два вклада в такую релаксацию — оптический и деформационный; определены процентные их соотношения в формировании суммарного эффекта. Приведены температурные зависимости амплитуд релаксации, индуцированных механическим напряжением разности хода и двулучепреломления.

Фотоупругая (пьезооптическая) релаксация — это изменение во времени оптических параметров образца при действии строго постоянного механического напряжения. Пьезокалорический механизм релаксационных изменений индуцированной механическим напряжением  $\sigma_m$  разности хода  $\delta\Delta_{km}$  доказан на примере кристаллов группы триглицинсульфата (ТГС) в [1,2]. В [3] отмечено, что величина релаксационного изменения разности хода  $\delta\Delta_{km}^r$  определяется двумя вкладками: оптическим (это релаксационное изменение двулучепреломления  $\delta\Delta n_{km}^r$ ) и деформационным, обусловленным релаксационным изменением толщины кристалла в направлении распространения света  $\delta d_{km}^r$ . Однако остались невыясненными: 1) величина каждого из вкладов в суммарный эффект релаксации разности хода; 2) причины разных знаков величин  $\delta\Delta_{km}^r$ , которые могут определяться и разнознаковостью двух упомянутых выше слагаемых в  $\delta\Delta_{km}^r$ .

В этом сообщении приводятся и обсуждаются температурные зависимости амплитуд релаксации  $\delta\Delta n_{km}^r$  чисто пьезооптического эффекта, описывающего изменение двулучепреломления (а не разности хода) при действии  $\sigma_m$ .

Отметим, что двухиндексное обозначение при  $\delta\Delta_{km}^r$ ,  $\delta\Delta n_{km}^r$  и  $\delta d_{km}^r$  не указывает на тензорный характер этих величин — они не являются тензорами, а индексы лишь обозначают условия эксперимента:  $k = 1, 2, 3$  — направления распространения света,  $m = 1, 2, 3$  — направления действия давления.

Оптический и деформационный вклады в эффект фотоупругой релаксации связаны с релаксационным изменением разности хода следующей зависимостью:

$$\delta\Delta_{km}^r = \delta(\Delta n_k \cdot d_k)_m^r = \delta\Delta n_{km}^r d_k + \Delta n_k \delta d_{km}^r, \quad (1)$$

где  $d_k$  — размер образца в направлении распространения светового луча,  $\Delta n_k$  — двулучепреломление.

Из (1), определив  $\delta d_{km}^r$  и используя экспериментально измеренные величины  $\delta\Delta_{km}^r$ , можем найти величину чисто пьезооптической релаксации  $\delta\Delta n_{km}^r$ .

Подчеркнем, что релаксация линейных размеров образца  $\delta d_{km}^r$  имеет исключительно пьезокалорическую природу, так как возможная релаксация деформации,

обусловленная пластическими эффектами, отсутствует, поскольку действующие механические напряжения малые, а именно более чем на порядок меньше механической прочности кристаллов ТГС (в эксперименте использовались  $\sigma_m = 10-50 \cdot 10^5 \text{ N/m}^2$ ). Кроме того, отсутствие пластических деформаций подтверждено отсутствием остаточных эффектов после снятия механического напряжения и завершения релаксации  $\delta\Delta_{km}^r(\tau)$ , здесь  $\tau$  — время релаксации.

Соотношение для расчета  $\delta d_{km}^r$  получим, исходя из следующих соображений. Быстрое действие механического напряжения  $\sigma_m$  приводит к адиабатическому изменению температуры на величину  $\delta T_m^r$ , которая определяется из формулы [4]

$$\delta T_m^r = -(T_0/C_p) \cdot \alpha_m \cdot \sigma_m, \quad (2)$$

где индекс  $m$  обозначает направление действия давления,  $\alpha_m$  — коэффициент линейного расширения в направлении действия давления,  $C_p$  — теплоемкость при постоянном давлении, приведенная к единице объема,  $T_0$  — температура внешней среды.

В дальнейшем температура образца за время релаксации  $\tau$  вследствие теплообмена с внешней средой, изменится до начального значения. Это релаксационное изменение температуры ( $-\delta T_m^r$ ) вызывает релаксационное изменение размеров образца  $\delta d_{km}^r$ , величина которого пропорциональна коэффициенту теплового расширения  $\alpha_k$  и величине изменения температуры

$$\delta d_{km}^r = d_k \cdot \alpha_k \cdot (-\delta T_m^r), \quad (3)$$

где индекс  $m$  обозначает зависимость как релаксационного изменения температуры, так и релаксации деформации от направления действия давления. Соотношение (3) будем использовать для расчета релаксации деформации и с учетом (1) деформационного вклада в  $\delta\Delta_{km}^r$  (второй член).

Для определения релаксации двулучепреломления соотношение (1) запишем с учетом (2) и (3) в следующем виде:

$$\delta\Delta_{km}^r = \delta\Delta n_{km}^r d_k + \Delta n_k d_k \alpha_k (T_0/C_p) \alpha_m \sigma_m. \quad (4)$$

Оптический и деформационный вклады, рассчитанные на единицу длины, и релаксацию разности хода  $\delta\Delta_{km}^r/d_k$  кристаллов ТГС для некоторых температур и  $\sigma_m = 50 \cdot 10^5 \text{ N/cm}^2$

Геометрия эксперимента	$T_0 = 293 \text{ K}$			$T_0 = 321 \text{ K}$			$T_0 = 327 \text{ K}$		
	$\delta\Delta_{km}^r/d_k \times 10^{-6}$	оптический вклад, %	деформационный вклад, %	$\delta\Delta_{km}^r/d_k \times 10^{-6}$	оптический вклад, %	деформационный вклад, %	$\delta\Delta_{km}^r/d_k \times 10^{-6}$	оптический вклад, %	деформационный вклад, %
$k = 1$ $m = 3$	2.2	96.1	3.9	17.3	91.0	9.0	-1.7	100.3	-0.3
$k = 2$ $m = 3$	-0.2	103.5	-3.5	1.7	70.0	30.0	-0.1	101.0	-1.0
$k = 3$ $m = 1$	3.0	117.0	-17.0	-8.6	166.0	-66.0	3.8	99.4	0.6

Из (4), используя известные значения  $\alpha_k$  и  $\alpha_m$  [5],  $\Delta n_k$  [6] для кристаллов ТГС и измеренные нами  $\delta\Delta_{km}^r$ , рассчитаны релаксационные изменения двулучепреломления  $\delta\Delta n_{km}^r$  после приложения или снятия механического напряжения  $\sigma_m$ . Отметим, что знак измеренного экспериментально значения  $\delta\Delta_{km}^r$  определен относительно естественной разности хода  $\Delta_k$  с помощью известных компенсационных методов, исходя из следующего критерия: если  $\delta\Delta_{km}^r$  увеличивает естественную разность хода  $\Delta_k$ , оно имеет знак "+", если уменьшает — знак "-".

Рассчитать  $\delta\Delta n_{km}^r$  можно и другим путем. Вычитая из температурных изменений разности хода  $\delta\Delta_k(T) = \delta\Delta n_k(T) \cdot d_k + \Delta n_k \cdot \delta dk(T)$  деформационный вклад (второй член), получаем, как и в [7], температурные зависимости изменений двулучепреломления  $\delta\Delta n_k(T)$  и соответственно температурную производную  $d\Delta n_k(T)/dT$ . Используя эту производную и релаксационное изменение температуры ( $-\delta T_{km}^r$ ), определяем релаксацию двулучепреломления для каждой температуры  $T_0$

$$\delta\Delta n_{km}^r(T) = (d\Delta n_k(T)/dT) \cdot (-\delta T_m^r), \quad (5)$$

или с учетом (2)

$$\delta\Delta n_{km}^r(T) = (d\Delta n_k(T)/dT) \cdot (T_0/C_p)\alpha_m\sigma_m. \quad (6)$$

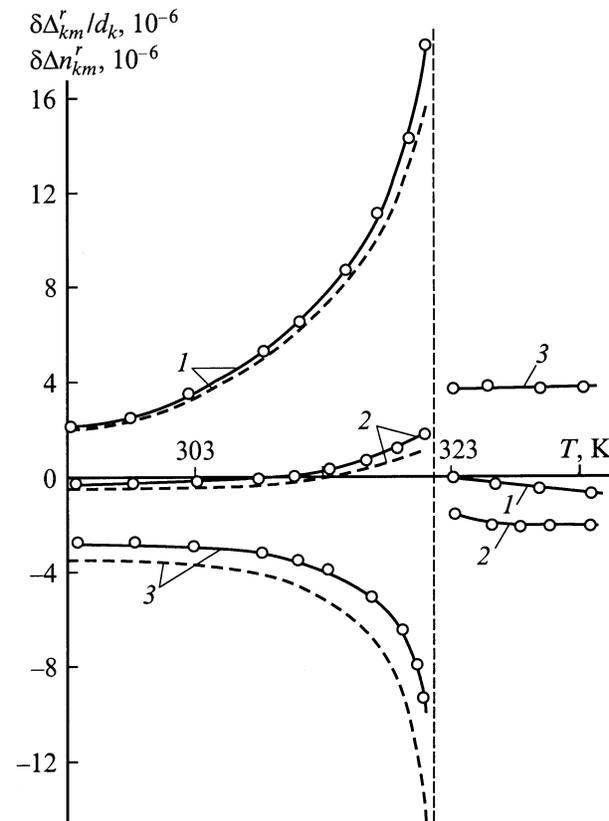
Оба способа расчета дают одинаковые результаты в пределах погрешности экспериментального определения  $\delta\Delta_{km}^r(T)$  и  $\delta\Delta_k(T)$ .

На рисунке для кристаллов ТГС представлены температурные зависимости абсолютной амплитуды релаксации  $\delta\Delta_{km}^r$ , приведенной к единице длины (сплошная линия), и рассчитанные описанным способом температурные зависимости релаксационного изменения двулучепреломления  $\delta\Delta n_{km}^r$  (штриховая линия) для тех геометрий эксперимента, которые обладают относительно большими значениями релаксации фотоупругости  $\delta\Delta_{km}^r$ . Значения индексов  $k, m = 1, 2, 3$  соответствуют направлениям, совпадающим с осями оптической индикатрисы кристалла  $X_1, X_2, X_3$ .

В таблице приведены сравнительные данные оптического и деформационного вкладов (соответственно первый и второй член в (1)) в релаксацию разности хода для некоторых температур.

Из рисунка и таблицы следует.

1. Деформационный вклад в  $\delta\Delta_{km}^r$  имеет разные знаки для разных геометрий эксперимента, т. е. в одних случаях уменьшает  $\delta\Delta_{km}^r$  (например, для  $k = 3, m = 1$  ниже  $T_c$



Температурные зависимости амплитуд релаксации индуцированных разности хода  $\delta\Delta_{km}^r/d_k$  (сплошная линия, эксперимент) и двулучепреломления  $\delta\Delta n_{km}^r$  (штриховая линия, расчет) для кристалла ТГС: 1 —  $\delta\Delta_{13}^r/d_1$  и  $\delta\Delta n_{13}^r$ , 2 —  $\delta\Delta_{23}^r/d_2$  и  $\delta\Delta n_{23}^r$ , 3 —  $\delta\Delta_{31}^r/d_3$  и  $\delta\Delta n_{31}^r$  ( $\sigma_m = 50 \cdot 10^5 \text{ N/cm}^2$ ).

и для  $k = 1, m = 3$  выше  $T_c$ ), в других — увеличивает (например, для  $k = 1, m = 3$  ниже  $T_c$  и  $k = 3, m = 1$  выше  $T_c$ ).

2. При переходе через  $T_c$  знак деформационного вклада для геометрий  $k = 1, m = 3$  и  $k = 3, m = 1$  изменяется.

3. При увеличении температуры к  $T_c$  во всех случаях абсолютная величина деформационного вклада увеличивается, а при  $T > T_c$  она незначительна ( $\leq 1\%$ ), вследствие чего на рисунке не изображена, и практически не зависит от  $T$ . Такая малая величина деформационного вклада в параэлектрической фазе обусловлена в основном малой величиной  $\delta d_{km}^r$  (малость последней следует из (3) при учете малых коэффициентов  $\alpha_k$  при  $T > T_c$  [5]).

4. Релаксационные изменения двулучепреломления по сравнению с естественными ( $\Delta n_1 = 0.075, \Delta n_2 = 0.028, \Delta n_3 = 0.103$ ) очень малые, что подтверждается следующими примерами для  $T = 20^\circ\text{C}$ :  $\delta\Delta n_{13}^r/\Delta n_1 \approx \delta\Delta n_{31}^r/\Delta n_3 \approx 3 \cdot 10^{-5}$ , или  $0.003\%$ ;  $\delta\Delta n_{32}^r/\Delta n_2 \approx 1.4 \cdot 10^{-5}$ , или  $0.0014\%$ . Однако по сравнению с пьезооптическими изменениями они имеют внушительную величину, например для  $T = 293\text{ K}$  имеем:  $\delta\Delta n_{13}^r/\delta\Delta n_{13} \approx 5.7\%$ ,  $\delta\Delta n_{31}^r/\delta\Delta n_{31} \approx 3.0\%$ ,  $\delta\Delta n_{23}^r/\delta\Delta n_{23} \approx 1.5\%$ , а для  $T \approx T_c$ :  $\delta\Delta n_{13}^r/\delta\Delta n_{13} \approx 16.4\%$ ,  $\delta\Delta n_{31}^r/\delta\Delta n_{31} \approx 16.6\%$ ,  $\delta\Delta n_{23}^r/\delta\Delta n_{23} \approx 7.0\%$ , где  $\delta\Delta n_{km}$  — пьезооптические изменения, которые получены из экспериментально определенных пьезооптических изменений разности хода  $\delta\Delta_{km}$  и учета величины упругого вклада по методике [8].

5. Хотя во всем температурном интервале исследования величина деформационного вклада всегда меньше оптического, в окрестности  $T_c$  она достигает больших значений и для геометрии эксперимента  $k = 3, m = 1$  составляет  $66\%$  от суммарного эффекта.

Из пункта 5 следует, что причиной разнознаковости величин  $\delta\Delta_{km}^r$  и изменения знака при переходе через  $T_c$  не может являться разнознаковость оптического и деформационного вкладов, поскольку последний вклад всегда меньше. Разнознаковость обусловлена исключительно взаимодействием знаков термооптического (по разности хода) и пьезокалорического эффектов в пьезокалорической модели релаксации  $\delta\Delta_{km}^r$ , описанной в [1–3].

В заключение отметим, что обнаруженная инверсия знака релаксации разности хода  $\delta\Delta_{23}^r$  и двулучепреломления  $\delta\Delta n_{23}^r$  при  $T = 308\text{ K}$  (кривая 2 на рисунке) есть не что иное, как пьезокалорическое отображение термооптического эффекта, для которого характерна такая инверсия при распространении света вдоль оси  $X_2$  [7].

## Список литературы

- [1] Б.Г. Мыцык, Н.М. Демьянишин. ФТГ **40**, 2, 318 (1998).
- [2] Б.Г. Мыцык, Н.М. Демьянишин. УФЖ **43**, 4, 479 (1998).
- [3] N.O. Romanyuk, B.H. Mytsyk, N.M. Demyanyshyn. Ferroelectrics **203**, 101 (1997).
- [4] Ю.И. Сиротин, М.П. Шаскольская. Основы кристаллографии. Наука, М. (1979). 639 с.

- [5] J. Stankowski, W. Malinowski. Acta Phys. Pol. **A58**, 6, 773 (1980).
- [6] Н.Р. Иванов, В.Ф. Зотов. Кристаллография **11**, 6, 924 (1966).
- [7] Н.Р. Иванов, С.Я. Бендерский, И.О. Тухтасунов. Изв. АН СССР. Сер. физ. **39**, 4, 798 (1975).
- [8] Н.А. Романюк, Б.Г. Мыцык. Оптика анизотропных сред. М. (1985). 155 с.