

Н.М. ДЕМ'ЯНИШИН

Фізико-механічний інститут ім. Г.В. Карпенка НАН України
(Вул. Наукова 5а, Львів 79601; e-mail: nmdem@ipt.lviv.ua)**РЕЛАКСАЦІЯ СТАТИЧНОЇ ФОТОПРУЖНОСТІ
В КРИСТАЛАХ ГЕРМАНАТУ СВИНЦЮ**

УДК 537.226.33:53.092

Досліджено релаксацію статичної фотопружності в сегнетоелектричних кристалах германату свинцю. Виявлено анізотропію амплітуд релаксації, а також їх аномалії в околі фазового переходу. Фотопружні релаксації і особливості їх температурної поведінки пояснено в рамках п'єзокалоричного механізму.

Ключові слова: фотопружність, релаксація фотопружності, сегнетоелектрики.

1. Вступ

Досліджуючи статичну фотопружність кристалів, як правило, не обговорюють питання релаксаційних змін їх оптичних параметрів при дії на зразок незмінних у часі механічних напружень [1–3]. Вважається, що для хороших фотопружних і акустооптичних матеріалів (парателурит, молібдат свинцю, фосфід галію, борат стронцію, та ін.) [4–7] перетворення механічних напружень в зміни оптичних параметрів фотопружного елемента відбувається без залишкових явищ і релаксацій аж до руйнуючих механічних напружень. Саме відсутність фотопружних релаксацій є умовою високої добротності фотопружних і акустооптичних модуляторів світла.

Перспективність застосування низькосиметричних кристалів в акустооптичних модуляторах зумовлена їх великими фотопружними коефіцієнтами [8, 9]. Проте дослідження [10–12] показують, що при ретельному експерименті з похибками 0,02–0,1% можна виявити фотопружні релаксації (післядію) навіть за дії малих механічних напружень, що становлять 5–10% від напружень руйнування. У даній роботі вивчена релаксація статичної фотопружності в сегнетоелектричних кристалах германату свинцю ($\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$). Отримані результати порівнюються з фотопружною релаксацією модельних сегнетоелектричних кристалів групи тригліцинсульфату.

2. Методика експерименту

Фотопружна (п'єзооптична) релаксація – це зміна в часі оптичних параметрів зразка за дії незмінних в часі механічних напружень.

© Н.М. ДЕМ'ЯНИШИН, 2015

ISSN 2071-0194. Укр. фіз. журн. 2015. Т. 60, № 3

Реєструвалися залежності величини релаксаційних змін різниці ходу $\delta\Delta_{km}^{\text{rel}}$ від часу t при дії на зразок сталих механічних напружень σ_m (індекси $k, m = 1, 2, 3$ відповідають осям оптичної індикатрис кристала X_1, X_2, X_3 і вказують на умови експерименту – напрямки поширення світла і дії одновісного тиску відповідно).

Релаксації вивчалися поляризаційно-оптичним методом [13] шляхом визначення змін у часі інтенсивності світла I на лінійній ділянці періодичної залежності $I(\Delta_{km})$:

$$I(\Delta_{km}) = (I_{\text{max}} - I_{\text{min}}) \sin^2 \frac{\pi}{\lambda} \Delta_{km} + I_{\text{min}}, \quad (1)$$

де I_{max} і I_{min} – максимальне і мінімальне значення інтенсивності світла, що виходить з аналізатора, за дії механічного напруження σ_m на зразок, Δ_{km} – різниця ходу (тут, як і вище, індекси k, m позначають умови експерименту), λ – довжина світлової хвилі (0,633 мкм).

Амплітуди релаксації $\delta\Delta_{km}^{\text{rel}}$ визначені на основі (1) як різниця $\Delta_{km}^{\sigma} - \Delta_{km}^{\tau}$, де Δ_{km}^{σ} – різниця ходу Δ_{km} в момент початку дії σ_m , а Δ_{km}^{τ} – різниця ходу Δ_{km} після завершення релаксації за час τ .

Відносна амплітуда релаксації β_{km} введена співвідношенням [10]:

$$\beta_{km} = \frac{\delta\Delta_{km}^{\text{rel}}}{\delta\Delta_{km}} \cdot 100\% = -\frac{2\delta\Delta_{km}^{\text{rel}}}{\pi_{km}^{\circ} d_k \sigma_m} \cdot 100\%, \quad (2)$$

де $\delta\Delta_{km}$ – індукована механічним напруженням σ_m різниця ходу, π_{km}° – п'єзооптичні коефіцієнти різниці ходу, d_k – товщина зразка в напрямку поширення світла. Знаки амплітуди релаксації визначено додатними, якщо зміни індукованої $\delta\Delta_{km}$ і релаксаційної $\delta\Delta_{km}^{\text{rel}}$ різниць ходу збігаються, і

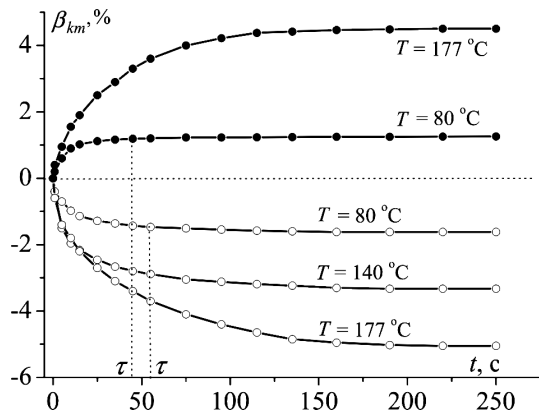


Рис. 1. Залежності зміни відносної амплітуди релаксації β_{km} від часу t : чорні кружечки – β_{12} , світлі кружечки – β_{13}

від’ємними, якщо $\delta\Delta_{km}^{rel}$ зменшує індуковану різницю ходу $\delta\Delta_{km}$.

Для точного вимірювання амплітуд релаксаційних змін різниць ходу, індукованих дією механічного напруження, були забезпечені такі умови: 1) підвищена жорсткість механічної частини установки для забезпечення стабільного в часі механічного напруження стиску σ_m , 2) за час t вимірювань амплітуд релаксації нестабільність інтенсивності джерела монохроматичного випромінювання не перевищувала 0,01 відсотка, 3) точність стабілізації температури зразка дорівнювала 0,01 градуса.

Досліджувалися зразки кристалів германату свинцю кубічної форми з розмірами $\sim 5 \times 5 \times 5$ мм, грані яких орієнтовані перпендикулярно до осей оптичної індикатриси.

3. Експериментальні результати та їх обговорення

На відміну від двовісних кристалів, наприклад, кристалів групи тригліцинсульфату [10–12], релаксації статичної фотопружності в кристалах германату свинцю при кімнатній температурі зафіксувати не вдалось. На рис. 1 наведені залежності відносних амплітуд релаксації β_{km} від часу t за дії сталого механічного напруження σ_m при різних температурах, починаючи з $T = 80$ °C.

Із цього рисунка видно, що максимальні амплітуди релаксації, визначені в області насичення залежностей $\beta_{km}(t)$, є анізотропними за знаком і за величиною. Часи релаксації τ , які відповідають

часам початку насичення залежностей $\beta_{km}(t)$, залежать від геометрії експерименту і за $T = 80$ °C становлять близько 50 с. Вони несуттєво залежать від величини σ_m і помітно зростають при підвищенні температури, дорівнюючи в околі фазового переходу ($T_c = 177$ °C) 200 с (рис. 1).

Залежність величини β_{km} від напрямку дії тиску m та поширення світла k , а також зміна знака β_{km} на протилежний при спостереженні релаксацій за дії тиску та при його знятті, дає підстави пов’язати анізотропію β_{km} з п’єзокалоричним ефектом [10–12, 14]. А саме, швидка зміна σ_m приводить до адіабатичної зміни температури зразка на величину δT_m^{rel} , пропорційну величині σ_m ; надалі температура зразка за певний час τ (час релаксації внаслідок теплообміну з зовнішнім середовищем) стає рівною температурі середовища. Ця релаксаційна зміна температури зумовлює термооптичну зміну індукованої різниці ходу на величину $\delta\Delta_{km}^{rel}$. Цей механізм фотопружної релаксації описується співвідношенням

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

де $d\Delta_k/dT$ – термооптичний коефіцієнт різниці ходу Δ_k , δT_m^{rel} – п’єзокалорична зміна температури зразка (індекс m при T_m^{rel} позначає залежність величини п’єзокалоричного ефекту від напрямку дії одновісного тиску), $dT_m^{rel}/d\sigma_m$ – п’єзокалоричний коефіцієнт.

Зазначимо, що в даній роботі п’єзокалорична зміна температури кристала визначалася на основі відомого співвідношення [15]:

$$\delta T_m^{rel} = -\frac{T_o}{C'_p} \alpha_m \sigma_m, \quad (4)$$

де T_o – температура зразка і зовнішнього середовища, C'_p – теплоємність кристала, віднесена до одиниці об’єму ($C'_p = \rho C_p$, C_p – теплоємність за постійного тиску, ρ – густина матеріалу), α_m – коефіцієнти температурного розширення.

На основі (3), (4) отримано вираз для величини релаксаційної зміни індукованої різниці ходу $\delta\Delta_{km}^{rel}$:

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

Із (2) і (5) випливає обґрунтування анізотропії величин β_{km} (рис. 1): 1) значення β_{13} рівне зна-

ченню амплітуди релаксації β_{23} , оскільки термооптичні коефіцієнти $d\Delta_1/dT$ і $d\Delta_2/dT$ однакові [16]; 2) нерівність амплітуд релаксації $\beta_{12} < \beta_{13}$, які відповідають одному й тому ж термооптичному коефіцієнту $d\Delta_1/dT$, зумовлено нерівністю $\delta T_2^{\text{rel}} < \delta T_3^{\text{rel}}$, оскільки, згідно з (4), остання нерівність відповідає нерівності коефіцієнтів температурного розширення $\alpha_1 = \alpha_2 < \alpha_3$ в сегнетоелектричній фазі [17]; 3) неможливість зафіксувати релаксаційні зміни в кристалі при кімнатній температурі пояснюється як малим термооптичним коефіцієнтом $d\Delta_1/dT$, так і невеликими коефіцієнтами температурного розширення α_1, α_3 в сегнетоелектричній фазі далеко від точки фазового переходу (ФП).

П'єзокалоричний механізм фотопружних релаксацій задовільно описує також їх температурні аномалії в області ФП (рис. 2).

З рис. 2 випливає, що експериментальна і розрахункова залежності $\beta_{13}(T)$ добре узгоджуються. Це характерно і для залежності $\beta_{12}(T)$. Для розрахунків $\beta_{km}(T)$ на основі формул (2), (5) використано температурні залежності густини ρ кристала та питомої теплоємності C_p з [18, 19], коефіцієнтів температурного розширення $\alpha_m(T)$ з [17]; температурні залежності термооптичних коефіцієнтів різниці ходу $d\Delta_k/dT$ визначені на основі залежностей $\delta\Delta_k(T)/d_k$, наведених в [16].

З рис. 2 видно, що температурні аномалії амплітуд релаксації β_{km} в кристалах германату свинцю в околі фазового переходу T_c є суттєво меншими порівняно з аномаліями, характерними для кристалів групи тригліцинсульфату [11, 12, 14], що, відповідно до (4), зумовлено меншими аномаліями термооптичних коефіцієнтів $d\Delta_k/dT$ [16] в області ФП, та коефіцієнтів лінійного розширення α_1, α_3 [17].

Максимальні значення амплітуд релаксації для різних геометрій експерименту спостерігаються по різні боки T_c (рис. 2). Це пояснюється тим, що п'єзозміщення ФП для механічних напружень стиску σ_1 і σ_3 має протилежні знаки [16]. Крім того, величина амплітуди релаксації в кристалах германату свинцю в параелектричній фазі несуттєво відрізняється від величини амплітуд в околі T_c в сегнетоелектричній фазі. Це пов'язано з великими значеннями коефіцієнтів температурного розширення α_1, α_3 в параелектричній фазі [17].

Звернемо увагу на те, що релаксацій фотопружності при поширенні світла в напрямку оптичної

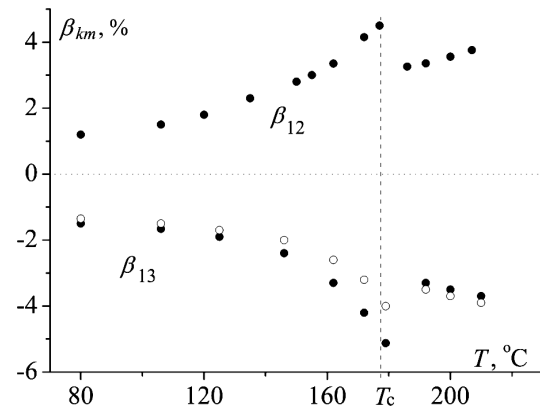


Рис. 2. Температурні аномалії відносної амплітуди релаксації β_{km} : чорні кружечки – експеримент, світлі кружечки – розрахунок

осі в кристалах германату свинцю не зафіксовано, це зумовлено нульовими значеннями термооптичних коефіцієнтів у цьому напрямку.

4. Висновки

У роботі показано, що релаксації статичної фотопружності та їх анізотропія в кристалах германату свинцю добре описуються на основі п'єзокалоричного механізму. Температурні аномалії відносних амплітуд фотопружної релаксації в області ФП зумовлені аномаліями термооптичних коефіцієнтів і коефіцієнтів температурного розширення. А далеко від ФП (при $T < 80$ °C) відсутність таких релаксацій зумовлена надто малими значеннями термооптичних коефіцієнтів кристала [16].

1. Т.С. Нарасимхамурти, *Фотоупругие и электрооптические свойства кристаллов* (Мир, Москва, 1984).
2. A. Feldman, D. Horowitz, R.M. Waxler, and M.J. Dodge, *Optical Materials Characterization*, Tech. Note 993 (Nat. Bureau of Standards, Washington, 1979).
3. С.С. Горбач, А.В. Пахнев, М.П. Шаскольская, *Фотоупругие свойства кристаллов. Обзоры по электронной технике. Серия: Материалы* (ЦНИИ Электроника, Москва, 1974).
4. А.А. Блистанов, В.С. Бондаренко, Н.В. Переломова, Ф.Н. Стрижевская, В.В. Чкалова, М.П. Шаскольская, *Акустические кристаллы* (Наука, Москва, 1982).
5. Yu. Vasyukiv, V. Savaryn, I. Smaga, I. Skab, and R. Vlokh, *Appl. Opt.* **50**, 2512 (2011).
6. Б.Г. Мьщык, А.С. Андрущак, Я.П. Кость, *Кристаллография* **57**, 131 (2012).

7. Н.М. Дем'янишин, Вісник НУ ЛП, серія Фізико-математичні науки **768**, 111 (2013).
8. G.A. Coquin, D.A. Pinnow, and A.W. Warner, J. Appl. Phys. **42**, 2162 (1971).
9. D.K. Biegelsen, Tu Chen, and J.C. Zesch, J. Appl. Phys. **46**, 941 (1975).
10. Н.М. Дем'янишин, Б.Г. Мыцьк, ФТТ **44**, 144 (2002).
11. Б.Г. Мицьк, Б.І. Гнатик, Н.М. Дем'янишин, УФЖ **47**, 1049 (2002).
12. Б.Г. Мицьк, Н.М. Дем'янишин, Журнал фізичних досліджень **2**, 139 (1998).
13. А.С. Сонин, А.С. Василевская, *Электрооптические кристаллы* (Атомиздат, Москва, 1971).
14. Н.М. Дем'янишин, Б.Г. Мыцьк, ФТТ **55**, 2379 (2013).
15. Ю.И. Сиротин, М.П. Шаскольская, *Основы кристаллофизики* (Наука, Москва (1979)).
16. Б.Г. Мыцьк, В.А. Ромашко, Я.И. Шопа, ФТТ **35**, 2272 (1993).
17. H. Iwasaki, Sh. Miyazawa, and N. Niizeki, J. Appl. Phys. **43**, 4907 (1972).
18. G.R. Barsh, L.J. Bonczar, and R.E. Newnham, Phys. Status Solidi A **29**, 241 (1975).
19. А.А. Буш, Е.А. Попова, ФТТ **46**, 875 (2004).

Одержано 26.02.14

Н.М. Дем'янишин

РЕЛАКСАЦИЯ СТАТИЧЕСКОЙ
ФОТОУПРУГОСТИ В КРИСТАЛЛАХ
ГЕРМАНАТА СВИНЦА

Резюме

Исследована релаксация статической фотоупругости в кристаллах германата свинца ($Pb_5Ge_3O_{11}$). Выявлена анизотропия амплитуд релаксации, а также их аномалии в области фазового перехода. Фотоупругие релаксации и особенности их температурного поведения объяснены в рамках пьезокалорического механизма.

N.M. Demyanyshyn

RELAXATION OF STATIC PHOTOELASTICITY
IN LEAD GERMANATE CRYSTALS

Summary

The relaxation of static photoelasticity in lead germanate ($Pb_5Ge_3O_{11}$) crystals has been studied. The anisotropy of relaxation amplitudes and their anomalies near the phase transition point were revealed. The photoelastic relaxations and peculiarities in their temperature behavior are explained as manifestations of the piezocaloric mechanism.