

## ЗНАКИ ПРУЖНООПТИЧНИХ КОЕФІЦІЄНТІВ У НИЗЬКОСИМЕТРИЧНИХ МАТЕРІАЛАХ

Б. Г. МИЦИК, Н. М. ДЕМ'ЯНИШИН, Я. П. КОСТЬ

Фізико-механічний інститут ім. Г. В. Карпенка НАН України, Львів

Для кристалів вольфрамату кальцію  $\text{CaWO}_4$  на основі п'єзооптичних  $\pi_m$  і пружних  $C_{mn}$  коефіцієнтів заповнено матрицю пружнооптичних констант  $p_{in}$  та розраховано похибки їх визначення. Виявлено емпіричну закономірність: знаки п'єзо- і пружнооптичних коефіцієнтів з однаковими індексами збігаються. Показано, що ця закономірність справедлива також для інших низькосиметричних кристалів, які відносяться до різних класів симетрії. За найбільшими пружнооптичними коефіцієнтами вольфрамат кальцію переважає деякі відомі акустооптичні матеріали, тому перспективний для застосування в акустооптичних пристроях.

**Ключові слова:** п'єзо- і пружнооптичні коефіцієнти, інтерферометричний і акустооптичний методи, акустооптичні матеріали.

До низькосиметричних пружнооптичних матеріалів віднесемо ті, що мають велику кількість незалежних компонент матриці пружнооптичних коефіцієнтів (ПрОК)  $p_{in}$ , в т. ч. неголовних компонент, коли індекси  $i, n = 4, 5, 6$ . Наприклад, вольфрамат кальцію  $\text{CaWO}_4$  (клас симетрії  $4/m$ ) володіє десятьма незалежними компонентами матриці  $p_{in}$ , в т.ч. неголовними недіагональними  $p_{16}, p_{61}$  і  $p_{45}$ , ніобат літію  $\text{LiNbO}_3$  (клас  $3m$ ) – вісьмома, в т. ч. компонентами  $p_{14}$  і  $p_{41}$ , сегнетова сіль  $\text{NaKC}_4\text{H}_4\text{O}_6 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$  (клас 222) і тетрахлоргідраргіум цезію  $\text{Cs}_2\text{HgCl}_4$  (клас  $m\bar{3}m$ ) – дванадцятьма.

Перерахуємо причини, які унеможливають визначення всіх компонент матриці  $p_{in}$  та їх знаків для низькосиметричних кристалів. Зокрема, методом Діксона–Коуена [1, 2] можна знайти коефіцієнт акустооптичної якості:

$$M_2 = n_i^6 p_{in}^2 / (\rho v^3), \quad (1)$$

де  $n_i$  – показник заломлення кристала;  $\rho$  – його густина;  $v$  – швидкість акустичної хвилі. Однак коефіцієнт  $p_{in}$  входить у вираз (1) у другому степені, тому визначити його знак неможливо. Крім того, для складних геометрій експерименту, коли у вираз (1) замість нього входить, як правило, складна сума таких коефіцієнтів, в т. ч. з індексами  $i, n$ , які мають значення 4, 5, 6, важко розрахувати й їх абсолютні значення. Зауважимо, що в працях [1, 2] відсутні вирази для обчислення конкретних коефіцієнтів  $p_{in}$ , але сумніватися в правильності методу Діксона–Коуена не доводиться, оскільки встановлені там значення ПрОК  $p_{in}$  для двох десятків акустооптичних матеріалів у подальшому підтвердили інші автори, в т. ч. іншими методами. Однак їх знаки знайдені лише для найпростіших за симетрією кубічних кристалів.

Акустооптичними методами Бергмана–Фуеса [3] та Петерсона [4] можна визначити лише відношення  $p_{12}/p_{11}$  або складні комбінації коефіцієнтів  $p_{in}$  типу  $(p_{11} + p_{12} + 2p_{44})/(p_{11} + p_{12} - 2p_{44})$  для кубічних кристалів. Для кристалів нижчої симетрії подібні вирази не записано. Дифракційний метод Нарасімхамурті [5, 6] придатний для знаходження комбінацій ПрОК типу  $(p_{33} n_3^3)/(p_{13} n_1^3)$  у тригональ-

них кристалах (класи симетрії  $\bar{3}$ ,  $32$ ,  $3m$ ). Методом брілюєнівського розсіювання (БР) вдається визначити коефіцієнти  $p_{in}$  кубічних кристалів [7, 8] або лише головні компоненти матриці  $p_{in}$  ( $i, n = 1, 2, 3$ ) у кристалах нижчої симетрії (наприклад, в [9] подані результати для трьох головних ПрОК тетрагональних кристалів). Цим методом визначено [10, 11] всі коефіцієнти  $p_{in}$  кристалів  $\text{LiNbO}_3$  (клас симетрії  $3m$ ) та  $\text{CaMoO}_4$  (клас  $4/m$ ), включаючи їх знаки. Однак через відсутність співвідношень для встановлення ПрОК цими результатами не можна скористатися для детального вивчення пружнооптичного ефекту в низькосиметричних кристалах. Підкреслимо, що значення коефіцієнтів  $p_{in}$  для ніобату літію, визначені різними авторами акустооптичними методами, суттєво відрізняються: в 1,3–1,5 рази – для  $p_{12}$ ,  $p_{31}$ ,  $p_{41}$ , у 1,6–2,1 рази – для  $p_{11}$ ,  $p_{13}$ ,  $p_{14}$ ,  $p_{33}$ ,  $p_{44}$  [10, 12], тобто похибки великі. З оглядом акустооптичних методів визначення різних комбінацій пружнооптичних коефіцієнтів можна ознайомитись у працях [6, 13].

Таким чином, використовуючи лише акустооптичні методи, неможливо з високою точністю встановити значення і знаки всіх компонент матриці  $p_{in}$ , особливо в низькосиметричних кристалах. Наприклад, значення і знаки ПрОК ромбічних кристалів знайдено [14, 15] з допомогою трьох методів (акустооптичного, інтерферометричного і поляризаційно-оптичного) за дії на зразки, крім одновісного, ще й гідростатичного тиску.

Нижче матрицю коефіцієнтів  $p_{in}$  для низькосиметричних тетрагональних кристалів вольфрамату кальцію (клас симетрії  $4/m$ ) заповнено на основі п'єзооптичних коефіцієнтів (ПОК)  $\pi_{im}$  і відомого виразу:

$$p_{in} = \pi_{im} C_{mn}, \quad (2)$$

де  $C_{mn}$  – коефіцієнти жорсткості. Коефіцієнти  $\pi_{im}$  визначені статичним інтерферометричним [16, 17], а коефіцієнти  $C_{mn}$  – акустичним [18, 19] методами.

Виявлена емпірична закономірність: знаки п'єзо- і пружнооптичних коефіцієнтів з однаковими індексами збігаються, що підтверджено також для тригональних кристалів кварцу (клас симетрії  $32$ ) і ніобату літію (клас  $3m$ ) [20, 21], ромбічних кристалів звичайної та амонієвої сегнетової солі [14, 15] і борату стронцію [22].

**Метод розрахунку коефіцієнтів  $p_{in}$  та їх похибок.** Деталізуємо вираз (2) для кристалів вольфрамату кальцію, зважаючи на нульові та залежні компоненти матриць  $\pi_{im}$  та  $C_{mn}$ .

Вирази для коефіцієнтів  $p_{11}$ ,  $p_{12}$  запишемо на основі співвідношення (2):

$$p_{11} = \pi_{11}C_{11} + \pi_{12}C_{21} + \pi_{13}C_{31} + \pi_{14}C_{41} + \pi_{15}C_{51} + \pi_{16}C_{61}, \quad (3)$$

$$p_{12} = \pi_{11}C_{12} + \pi_{12}C_{22} + \pi_{13}C_{32} + \pi_{14}C_{42} + \pi_{15}C_{52} + \pi_{16}C_{62}. \quad (4)$$

Врахуємо, що тензор коефіцієнтів пружної жорсткості симетричний ( $C_{mn} = C_{nm}$ ), а також те, що для класу симетрії  $4/m$ , до якого відноситься вольфрамат кальцію, справедливо:  $\pi_{14} = \pi_{15} = 0$ ,  $C_{22} = C_{11}$ ,  $C_{32} = C_{23} = C_{13}$ ,  $C_{61} = C_{16}$ ,  $C_{62} = C_{26} = -C_{16}$ . Тому вирази (3) і (4) набудуть простішого вигляду (див. перші два рівняння (5)).

Аналогічно встановлюємо вирази для інших ненульових незалежних коефіцієнтів  $p_{in}$ :

$$\begin{aligned} p_{11} &= \pi_{11}C_{11} + \pi_{12}C_{12} + \pi_{13}C_{13} + \pi_{16}C_{16}, & p_{12} &= \pi_{11}C_{12} + \pi_{12}C_{11} + \pi_{13}C_{13} - \pi_{16}C_{16}, \\ p_{13} &= (\pi_{11} + \pi_{12})C_{13} + \pi_{13}C_{33}, & p_{31} &= \pi_{31}(C_{11} + C_{12}) + \pi_{33}C_{13}, & p_{33} &= 2\pi_{31}C_{13} + \pi_{33}C_{33}, \\ p_{44} &= \pi_{44}C_{44}, & p_{45} &= \pi_{45}C_{44}, & p_{16} &= (\pi_{11} - \pi_{12})C_{16} + \pi_{16}C_{66}, & p_{61} &= \pi_{61}(C_{11} - C_{12}) + \pi_{66}C_{16}, \\ & & & & p_{66} &= 2\pi_{61}C_{16} + \pi_{66}C_{66}. \end{aligned} \quad (5)$$

Для розрахунку коефіцієнтів  $p_{in}$  кристалів  $\text{CaWO}_4$  використали значення ПОК  $\pi_{im}$ , визначені інтерферометричним методом, детально описаним раніше [17, 21] (усе в Brewsters, 1 Br =  $10^{-12}$  м<sup>2</sup>/N):

$$\begin{aligned} \pi_{11} &= 1,86 \pm 0,12 (6,5\%), & \pi_{12} &= -0,60 \pm 0,03 (5\%), & \pi_{13} &= 1,52 \pm 0,15 (10\%), \\ \pi_{31} &= 1,02 \pm 0,12 (11,5\%), & \pi_{33} &= 1,01 \pm 0,14 (14\%), & \pi_{44} &= 0,33 \pm 0,17 (52\%), \\ \pi_{66} &= -0,63 \pm 0,04 (7\%), & \pi_{16} &= -5,64 \pm 0,65 (12\%), & \pi_{61} &= |0,16| \pm 0,02 (13\%), \end{aligned}$$

$$\pi_{45} = -1,77 \pm 0,44 \text{ (25\%)}, \quad (6)$$

а пружні коефіцієнти  $C_{mn}$  взяли із праць [18, 19] (в од.  $10^9 \text{ N/m}^2$ ):

$$C_{11} = 145,9; C_{12} = 62,6; C_{13} = 39,2; C_{33} = 127,4; C_{44} = 33,5; C_{66} = 38,7; C_{16} = -19,2. \quad (7)$$

Похибки визначення ПОК  $\pi_{im}$  вказані у результатах (6), а коефіцієнтів  $C_{mn}$  взяті як 5% від їх значень (7). Зауважимо, що пружні коефіцієнти  $C_{mn}$  встановлені акустичним методом, який забезпечує, як правило, вищу точність їх вимірювань (~1%). Однак такі недоліки статичного експерименту встановлення ПОК  $\pi_{im}$ , які використані для розрахунку ПрОК  $p_{in}$ , як неоднорідність механічного напруження на зразку, незначна непаралельність граней, перпендикулярних до напрямку поширення світла в реальних зразках є причинами варіації деформації зразка за дії механічного напруження і, відповідно, похибки пружного доданку [21, 22]. Тому використання коефіцієнтів пружної податливості  $S_{km}$  з похибкою 5% (для розрахунку коефіцієнтів  $\pi_{im}$ ) і пружної жорсткості  $C_{mn}$  з такою ж похибкою (для розрахунку коефіцієнтів  $p_{in}$ ) є виправданим.

Похибки визначення пружнооптичних коефіцієнтів  $p_{in}$  розраховані як середньоквадратичні похибки добутку величин  $\pi_{im}$  і  $C_{mn}$  (згідно з виразом (2)):

$$\delta(\pi_{im}C_{mn}) = [(\delta\pi_{im})^2(C_{mn})^2 + (\pi_{im})^2(\delta C_{mn})^2]^{1/2}. \quad (8)$$

Подамо приклад розрахунку похибки  $\delta p_{in}$ . Використовуючи формулу (8), запишемо рівняння для знаходження похибки, наприклад,  $\delta p_{33}$ . Вираз для  $p_{33}$  має два доданки (див. ф-лу (5)). Відповідно, для похибки  $\delta p_{33}$  дістанемо рівняння

$$\delta p_{33} = 2[(\delta\pi_{31})^2(C_{13})^2 + (\pi_{31})^2(\delta C_{13})^2]^{1/2} + [(\delta\pi_{33})^2(C_{33})^2 + (\pi_{33})^2(\delta C_{33})^2]^{1/2}. \quad (9)$$

Оскільки треба знайти середньоквадратичну похибку суми двох доданків, сформованих квадратними дужками, то рівняння (9) перепишемо так:

$$\delta p_{33} = [4(\delta\pi_{31} \cdot C_{13})^2 + 4(\pi_{31} \cdot \delta C_{13})^2 + (\delta\pi_{33} \cdot C_{33})^2 + (\pi_{33} \cdot \delta C_{33})^2]^{1/2}. \quad (10)$$

Підставимо в нього значення  $\pi_{im}$  та їх похибки  $\delta\pi_{im}$  з результатів (6), а значення  $C_{mn}$  – з результатів (7). Отримаємо:

$$\delta p_{33} = [4 \cdot (0,12 \cdot 10^{-12} \text{ м}^2/\text{Н} \times 39,2 \cdot 10^9 \text{ Н/м}^2)^2 + 4 \cdot (1,02 \cdot 10^{-12} \text{ м}^2/\text{Н} \times 1,96 \cdot 10^9 \text{ Н/м}^2)^2 + (0,14 \cdot 10^{-12} \times 127,4 \cdot 10^9)^2 + (1,01 \cdot 10^{-12} \times 6,37 \cdot 10^9)^2]^{1/2} = [88,5 \cdot 10^{-6} + 16,0 \cdot 10^{-6} + 318,1 \cdot 10^{-6} + 41,1 \cdot 10^{-6}]^{1/2} = 21,5 \cdot 10^{-3} = 0,02. \quad (11)$$

Аналогічно розраховані похибки визначення інших коефіцієнтів  $p_{in}$ .

**Результати та їх аналіз.** Використовуючи вирази (5) та значення п'єзооптичних коефіцієнтів  $\pi_{im}$  із (6) і коефіцієнтів пружної жорсткості  $C_{mn}$  з (7), розраховували всі компоненти  $p_{in}$  матриці пружнооптичних коефіцієнтів кристалів вольфрамату кальцію:

$$p_{11} = 0,40 \pm 0,03; \quad p_{12} = -0,02 \pm 0,02; \quad p_{13} = 0,24 \pm 0,02; \quad p_{31} = 0,25 \pm 0,02; \\ p_{33} = 0,21 \pm 0,02; \quad p_{44} = 0,011 \pm 0,006; \quad p_{45} = -0,060 \pm 0,015; \quad p_{16} = -0,27 \pm 0,03; \\ p_{61} = +0,025(-0,001) \pm 0,004; \quad p_{66} = -0,031(-0,018) \pm 0,002. \quad (12)$$

Звернемо увагу на те, що коефіцієнти  $p_{61}$  і  $p_{66}$  мають по два значення: перше відповідає розрахунку, коли у відповідний вираз (5) підставити додатне значення коефіцієнта  $\pi_{61}$ , а друге (в дужках) – його від'ємному значенню. Ця неоднозначність коефіцієнтів зумовлена тим, що в праці [23] коноскопічним методом знайдено лише абсолютне значення ПОК  $\pi_{61}$  (див. результат (6)), а визначити його інтерферометричним методом неможливо, оскільки відповідна похибка коефіцієнта  $\pi_{61}$ , за нашими даними, більш як удвічі перевищує його значення.

Відносні похибки визначення коефіцієнтів  $p_{in}$  (12) є малі – переважно від 7% для  $p_{11}$  і  $p_{66}$  до 16% для  $p_{61}$ . Лише похибки  $\delta p_{45}/p_{45}$  і  $\delta p_{44}/p_{44}$  суттєві (25 і 54%), що спричинено малими значеннями  $p_{45}$  і  $p_{44}$ , а коефіцієнт  $p_{12}$  і друге значення коефіцієнта  $p_{61}$  прямують до нуля в межах точності їх визначення.

Якщо на основі виразів (10) і (11) розрахувати похибку  $\delta p_{33}$ , внесена лише похибками  $\delta\pi_{im}$  п'єзооптичних коефіцієнтів (тоді з формули (10) дістанемо:

Матеріал; клас симетрії	$\pi_{11}$	$\pi_{12}$	$\pi_{13}$	$\pi_{31}$	$\pi_{33}$	$\pi_{14}$	$\pi_{41}$	$\pi_{44}$	Літ. джерела
LiNbO <sub>3</sub> ; 3m	-0,38 ± 0,02	0,09 ± 0,04	0,80 ± 0,11	0,50 ± 0,08	0,20 ± 0,06	-0,81 ± 0,11	-0,88 ± 0,07	2,25 ± 0,5	[13, 21]
LiNbO <sub>3</sub> ; MgO; 3m	-0,43 ± 0,03	0,15 ± 0,05	0,78 ± 0,10	0,50 ± 0,08	0,32 ± 0,06	-0,80 ± 0,11	-0,90 ± 0,08	2,0 ± 0,5	[21]
Кварц (589 nm); 32	1,35	2,69	1,94	3,11	0,07	-0,11	-0,34	-1,13	[20]
β-BaB <sub>2</sub> O <sub>4</sub> ; 3m	-1,6	-1,46	1,73	-1,6	3,7	-1,54	-2,02	-26,3	[24]
α-BaB <sub>2</sub> O <sub>4</sub> ; $\bar{3}m$	1,6	2,1	-4,3	1,5	-7,2	-14,2	2,8	24,6	[28]
Матеріал	$p_{11}$	$p_{12}$	$p_{13}$	$p_{31}$	$p_{33}$	$p_{14}$	$p_{41}$	$p_{44}$	Літ. джерела
LiNbO <sub>3</sub> , розрахунок	-0,021 ± 0,010	0,060 ± 0,012	0,172 ± 0,028	0,142 ± 0,018	0,118 ± 0,017	-0,052 ± 0,007	-0,109 ± 0,018	0,121 ± 0,033	Наші дані
LiNbO <sub>3</sub> , метод БР	-0,026	0,090	0,133	0,179	0,071	-0,075	-0,151	0,146	[10]
LiNbO <sub>3</sub> ; $\delta p_{in}^{av} / p_{in}$ , %	10,5	20	13	11,5	25	18	16	9,5	Наші дані
LiNbO <sub>3</sub> ; MgO	-0,028 ± 0,011	0,070 ± 0,013	0,174 ± 0,027	0,155 ± 0,018	0,154 ± 0,020	-0,053 ± 0,007	-0,118 ± 0,020	0,108 ± 0,031	Наші дані
Кварц (589 nm)	0,16	0,27	0,27	0,29	0,10	-0,030	-0,047	-0,079	[20]
β-BaB <sub>2</sub> O <sub>4</sub>	-0,195	-0,197	-0,059	-0,112	0,039	-0,005	-0,007	-0,078	[24]
α-BaB <sub>2</sub> O <sub>4</sub>	0,13	0,20	0,13	-0,15	-0,11	-0,08	0,10	-0,17	[28]

Примітки: 1) всі коефіцієнти  $p_{in}$  розраховані за виразом (2), за винятком даних [10], отриманих експериментально методом БР; 2) г'єзооптичні  $\pi_{mn}$  (в од.  $10^{-12}$  m<sup>2</sup>/N) і пружнооптичні  $p_{in}$  коефіцієнти вказаних тригональних кристалів визначені за умов:  $T = 20^\circ\text{C}$ ,  $\lambda = 633$  nm; 3) підкреслені значення  $\pi_{mn}$  і  $p_{in}$  демонструють окремі випадки незбігу знаків п'єзо-і пружнооптичних коефіцієнтів з однаковими індексами.

$\delta p_{33} = [4(\delta\pi_{31} \cdot C_{13})^2 + (\delta\pi_{33} \cdot C_{33})^2]^{1/2}$ , то легко переконатися, що внесок похибок  $\delta\pi_{im}$  у похибку  $\delta p_{33}$  визначальний (складає 94%). Цей важливий висновок стосується також інших коефіцієнтів: внесок  $\delta\pi_{im}$  у  $\delta p_{in}$  – від ~80% для  $\delta p_{11}$  і  $\delta p_{66}$  до 99,5% для  $\delta p_{44}$ . Отже, щоб суттєво зменшити похибки  $\delta p_{in}$ , необхідно зменшити похибки визначення ПОК  $\pi_{im}$ . Це реальна задача. Точність інтерферометричної методики вивчення п'єзооптичного ефекту сьогодні становить ~10% [14, 17, 24–27] (іноді й 30% [28]). Проте, використовуючи зразки, довжина яких в напрямку дії одновісного тиску в 2–3 рази більша, ніж їх поперечні розміри, можна досягти точності експерименту 3...5% (це точність визначення півхвильових напружень, на основі яких розраховують ПОК  $\pi_{im}$  [17, 21, 22]). Останнє зумовлено однорідністю механічних напружень у центральній частині таких зразків. Про малі похибки визначення коефіцієнтів  $\pi_{im}$  (2 і 9%) та  $p_{in}$  (2 і 3%) інтерферометричним методом йдеться також у праці [29].

Із результатів (6) і (12) випливає важливий емпіричний висновок: знаки п'єзо- і пружнооптичних коефіцієнтів, які мають однакові індекси, збігаються. Перевіримо це твердження для кристалів, що належать до інших класів симетрії. В таблиці подано результати визначення всіх п'єзооптичних  $\pi_{im}$  і пружнооптичних  $p_{in}$  коефіцієнтів для тригональних кристалів класів симетрії  $3m$ ,  $\bar{3}m$ ,  $32$ . Всі ПОК  $\pi_{im}$  знайдені статичним інтерферометричним методом. Коефіцієнти  $p_{in}$  і їх похибки розраховані за значеннями ПОК і виразами типу (5), (10). Похибки вказані лише для кристалів  $\text{LiNbO}_3$  і  $\text{LiNbO}_3:\text{MgO}$  (ніобат літію, легований оксидом магнію), оскільки в працях інших авторів їх нема, або подані лише для окремих коефіцієнтів  $\pi_{im}$  чи  $p_{in}$  і не вказано спосіб знаходження. Як бачимо із таблиці, для чистого ніобату літію і легованого оксидом магнію знаки відповідних коефіцієнтів  $\pi_{im}$  і  $p_{in}$  збігаються. Це стосується також кристалів кварцу [20]. Натомість, для кристалів  $\beta\text{-BaV}_4\text{O}_7$  [24] знаки коефіцієнтів  $\pi_{13}$  і  $p_{13}$  не збігаються, а для кристалів  $\alpha\text{-BaV}_4\text{O}_7$  [28] це стосується аж трьох п'єзооптичних і відповідних пружнооптичних коефіцієнтів:  $\pi_{13}$  і  $p_{13}$ ,  $\pi_{31}$  і  $p_{31}$ ,  $\pi_{44}$  і  $p_{44}$ . Збігаються знаки відповідних коефіцієнтів  $\pi_{im}$  і  $p_{in}$  також для ромбічних кристалів  $\text{SrV}_4\text{O}_7$  [22] та амонієвої сегнетової солі [15]. Натомість, для кристалів  $\text{C}_2\text{HgCl}_4$  [25, 30] знаки відповідних коефіцієнтів  $\pi_{21}$  і  $p_{21}$ ,  $\pi_{31}$  і  $p_{31}$  не збігаються. Можливими причинами цього є великі похибки визначення п'єзооптичних  $\pi_{im}$  і пружних  $C_{mn}$  коефіцієнтів, які входять у співвідношення типу (5). Зауважимо, що для кубічних кристалів, які є високосиметричними матеріалами, знаки відповідних ПОК і ПрОК переважно збігаються (див., наприклад, праці [6, 12, 13, 31]).

Особливу увагу слід звернути на значення пружнооптичних коефіцієнтів  $p_{in}$  ніобату літію, отримані статичним (наші дані) і динамічним (акустооптичним) методами брілюєнівського розсіювання [10]. Із таблиці бачимо, що знаки коефіцієнтів  $p_{in}$  ніобату літію, визначені статичним і динамічним методами, збігаються, а їх значення узгоджуються з високою точністю ~10...20%. Наприклад, відхилення від середнього значення  $p_{11}^{\text{av}}$  коефіцієнта  $p_{11}$ , визначеного нами (статичний метод) і в праці [10] (розсіювання Брілюєна), складає  $\delta p_{11}/p_{11}^{\text{av}} = 0,0025 \cdot 100\% : (1/2)(0,021+0,026) \approx 10,5\%$ . Підкреслимо, що ці результати чи не вперше демонструють узгодження значень і знаків пружнооптичних коефіцієнтів, отриманих незалежно статичним і динамічним методами в різних наукових лабораторіях. Оскільки в праці [10] не подані похибки визначення коефіцієнтів  $p_{in}$ , то не вдається встановити переваги статичного чи динамічного методів за точністю вивчення пружнооптичного ефекту.

## ВИСНОВКИ

Описано процедуру визначення знаків пружнооптичних коефіцієнтів у низькосиметричних кристалах, матриці яких мають велику кількість ненульових неза-

лежних компонент. На прикладі тетрагональних кристалів вольфрамату кальцію продемонстровано, що знаки знайдених статичним інтерферометричним методом п'єзооптичних коефіцієнтів і відповідних (з такими ж індексами) пружнооптичних збігаються. Цей висновок підтверджено на кількох тригональних і ромбічних кристалах. Чи не вперше показано (на прикладі кристалів ніобату літію), що пружнооптичні коефіцієнти, визначені статичним інтерферометричним і динамічним акустооптичним методами брїлюєнівського розсіювання світла (на різних зразках і в різних лабораторіях) узгоджуються як за значеннями, так і знаками.

Пружнооптичні коефіцієнти кристалів  $\text{CaWO}_4$  великі, а коефіцієнт  $p_{11}$  має нетипово велике значення ( $p_{11} = 0,40 \pm 0,03$ ). Для порівняння: найбільші коефіцієнти  $p_{in}$  відомих акустооптичних матеріалів  $\text{LiNbO}_3$ ,  $\beta\text{-BaV}_4\text{O}_7$  (див. таблицю) та  $\text{PbMoO}_4$  [12] не перевищують 0,18; 0,2 та 0,30 відповідно. Тому вольфрамат кальцію перспективний в акустооптичних пристроях. Ще більшим пружнооптичним ефектом володіють кристали  $\text{Cs}_2\text{HgCl}_4$  (чотири коефіцієнти  $p_{in}$  зі значеннями від 0,34 до 0,40) та кристали амонієвої сегнетової солі (усі дев'ять головних коефіцієнтів  $p_{in}$  перевищують 0,4, а коефіцієнти  $p_{22}$  і  $p_{23}$  досягають значення 0,8 [15]). Однак їх не застосовують в акустооптиці через велику гігроскопічність та низьку механічну міцність.

Оскільки для вольфрамату кальцію не вдалося визначити знак ПОК  $\pi_{61}$  (ні інтерферометричним, ні коноскопічним методами [21, 23]), отримано по два значення коефіцієнтів  $p_{61}$  і  $p_{66}$ :  $p_{61} = +0,025 \pm 0,004$ ,  $p_{66} = -0,031 \pm 0,002$  та  $p_{61} = -0,001 \pm 0,004$ ,  $p_{66} = -0,018 \pm 0,002$ . Тому аналізувати симетрію пружнооптичного ефекту методом побудови пружнооптичних поверхонь (див., наприклад, [13, 32]) слід на основі двох матриць  $p_{in}$ , в одну з яких входить перша група коефіцієнтів  $p_{61}$  і  $p_{66}$ , а в другу – друга. Визначивши на основі пружнооптичних поверхонь геометрію експерименту з найбільшою акустооптичною ефективністю, слід виготовити відповідні акустооптичні комірки і експериментально підтвердити достовірність однієї з вказаних груп коефіцієнтів  $p_{61}$  і  $p_{66}$ .

*РЕЗЮМЕ.* Для кристаллов вольфрамата кальция  $\text{CaWO}_4$  на основе пьезооптических  $\pi_{im}$  и упругих  $C_{mn}$  коэффициентов заполнено матрицу упругооптических констант  $p_{in}$  и рассчитаны погрешности их определения. Обнаружена эмпирическая закономерность: знаки пьезо- и упругооптических коэффициентов с одинаковыми индексами совпадают. Показано, что эта закономерность справедлива и для других низкосимметричных кристаллов, относящихся к разным классам симметрии. По величине упругооптических коэффициентов вольфрамат кальция превосходит некоторые известные акустооптические материалы, поэтому является перспективным для применения в акустооптических устройствах.

*SUMMARY.* Matrix of elasto-optic constants  $p_{in}$  is filled and an error of their determination is calculated for calcium tungstate  $\text{CaWO}_4$  crystals based on piezo-optic  $\pi_{im}$  and elastic  $C_{mn}$  coefficients. The empirical regularity is found: signs of piezo- and elasto-optic coefficients with the same indices coincide. It is shown that this regularity is true for other low-symmetric crystals which belong to different symmetry classes. Calcium tungstate dominates over some known acousto-optic materials by the largest values of elasto-optic coefficients and therefore it is prospective for application in acousto-optical devices.

1. Dixon R. W. and Cohen M. G. A new technique for measuring magnitudes of photoelastic tensors and its application to lithium niobate // *Appl. Phys. Lett.* – 1966. – **8**, № 8. – P. 205–207.
2. Dixon R. W. Photoelastic properties of selected materials and their relevance for applications to acoustic light modulators and scanners // *J. Appl. Phys.* – 1967. – **38**, № 13. – P. 5149–5153.
3. Бергман Л. Ультразвук и его применение в науке и технике. – М.: Изд-во иностр. лит., 1957. – 726 с.
4. Pettersen H. E. New ultrasonic technique for the determination of the ratios of strain-optical constants // *J. Acoust. Soc. Am.* – 1970. – **48**, № 5B. – P. 1093–1097.
5. Narasimhamurty T. S. Ultrasonic methods of determining elasto-optic constants of uniaxial and biaxial crystals // *Acta Crystallogr.* – 1961. – **14**, № 11. – P. 1176–1179.

6. *Narasimhamurthy T. C.* Фотоупругие и электрооптические свойства кристаллов. – М.: Мир, 1984. – 623 с.
7. *Yamada M., Wasa K., and Hamaguchi Ch.* Brillouin scattering in GaP // *Jap. J. Appl. Phys.* – 1976. – **15**, № 6. – P. 1107–1111.
8. *Brillouin scattering study of ZnO* / T. Azuhata, M. Takesada, T. Yagi et al. // *J. Appl. Phys.* – 2003. – **94**, № 2. – P. 968–972.
9. *Elastic and elasto-optical properties of  $Rb_{1-x}(NH_4)_xH_2AsO_4$  mixed crystals studied by Brillouin spectroscopy* / A. Trzaskowska, S. Mielcarek, B. Mroz, Z. Trybula // *Cryst. Res. Technol.* – 2010. – **45**, № 1. – P. 48–52.
10. *Авакянц Л. П., Киселев Д. Ф., Щитов Н. Н.* Фотоупругость  $LiNbO_3$  // *Физика твердого тела.* – 1976. – **18**, № 6. – С. 1547–1551.
11. *Акустооптические параметры кристаллов молибдата кальция* / Л. П. Авакянц, В. В. Антипов, Д. Ф. Киселев и др. // Там же. – 1982. – **24**, № 10. – С. 3171–3172.
12. *Справочник. Акустические кристаллы* / Под ред. М. П. Шаскольской. – М.: Наука, 1982. – 632 с.
13. *Мицик Б. Г.* Фотопружність анізотропних матеріалів. – Львів: Ліга-прес, 2012. – 400 с.
14. *Narasimhamurthy T. S.* Photoelastic behavior of rochelle salt // *Phys. Rev.* – 1969. – **186**, № 3. – P. 945–948.
15. *Shahabuddin M. K. and Narasimhamurthy T. S.* Photoelastic studies on ammonium rochelle salt single crystal // *Sol. State Communic.* – 1982. – **43**, № 12. – P. 941–943.
16. *Mytsyk B., Demyanyshyn N., and Kost' Ya.* Analytical relations describing piezooptic effect in tetragonal crystals // *Ukr. J. Phys. Opt.* – 2013. – **14**, № 3. – P. 101–118.
17. *Мицик Б. Г., Андрущак А. С., Гаськевич Г. І.* Повне вивчення п'єзооптичного ефекту в кристалах лангаситу // *Укр. фіз. журн.* – 2007. – **52**, № 8. – С. 800–809.
18. *Farley J. M., Saunders G. A., and Chung D. Y.* Elastic properties of scheelite structure molybdates and tungstates // *J. Phys. C: Solid State Phys.* – 1975. – **8**, № 6. – P. 780–786.
19. *Farley J. M. and Saunders G. A.* Ultrasonic study of the elastic behaviour of calcium tungstate between 1,5 K and 300 K // *Ibid.* – 1972. – **5**, № 21. – P. 3021–3037.
20. *Narasimhamurthy T. S.* Photoelastic Constants of  $\alpha$ -Quartz // *J. Opt. Soc. Am.* – 1969. – **59**, № 6. – P. 682–686.
21. *Piezo-optic coefficients of MgO-doped  $LiNbO_3$  crystals* / B. G. Mytsyk, A. S. Andrushchak, N. M. Demyanyshyn et al. // *Appl. Opt.* – 2009. – **48**, № 10. – P. 1904–1911.
22. *Piezo-optic, photoelastic and acousto-optic properties of  $SrB_4O_7$  crystals* / B. Mytsyk, N. Demyanyshyn, I. Martynyuk-Lototska, R. Vlokh // *Ibid.* – 2011. – **50**, № 21. – P. 3889–3895.
23. *The study of piezo-optic effect by the conoscopic method* / B. Mytsyk, V. Gaba, N. Demyanyshyn, Ya. Kost' // *Proc. Sci. Conf. "Laser technologies. Lasers and their application"*. – Truskavets (Ukraine), 25–27 June 2013. – P. 94–95.
24. *Spatial anisotropy of photoelastic and acoustooptic properties in  $\beta$ - $BaB_2O_4$  crystals* / A. S. Andrushchak, Ya. V. Bobitski, M. V. Kaidan et al. // *Opt. Mater.* – 2004. – **27**, № 3. – P. 619–624.
25. *Photoelastic and acousto-optic properties of  $Cs_2HgCl_4$  crystals* / M. V. Kaidan, A. V. Zadorozhna, A. S. Andrushchak, A. V. Kityk // *Appl. Opt.* – 2002. – **41**, № 25. – P. 5341–5345.
26. *Mytsyk B.* Methods for the studies of the piezo-optical effect in crystals and the analysis of experimental data. I. Methodology for the studies of piezo-optical effect // *Ukr. J. Phys. Opt.* – 2003. – **4**, № 1. – P. 1–26.
27. *Мицик Б. Г., Андрущак А. С., Кость Я. П.* Статическая фотоупругость кристаллов фосфида галлия // *Кристаллография.* – 2012. – **57**, № 1. – С. 131–137.
28. *Acousto-optic interaction and photoelastic properties of  $Li_2B_4O_7$  and  $\alpha$ - $BaB_2O_4$  crystals at the wavelength of 442 nm* / I. Martynyuk-Lototska, T. Dudok, O. Mys et al. // *Ukr. J. Phys. Opt.* – 2009. – **10**, № 4. – P. 218–225.
29. *Interferometric measurements of piezooptic coefficients by means of four-point bending method* / O. Krupych, V. Savaryn, I. Skab, R. Vlokh // *Ukr. J. Phys. Opt.* – 2011. – **12**, № 3. – P. 150–159.
30. *The indicative surfaces of photoelastic effect for  $Cs_2HgCl_4$  biaxial crystals* / M. V. Kaidan, B. V. Tybinka, A. V. Zadorozhna et al. // *Opt. Mater.* – 2007. – **29**, № 5. – P. 475–480.
31. *Optical materials characterization* / A. Feldman, D. Horowitz, R. M. Waxler, M. J. Dodge // *National Bur. Stand. (USA). Tech. Note 993.* – 1979. – 71 p.
32. *Demyanyshyn N. M., Mytsyk B. G., and Sakharuk O. M.* Elasto-optic effect anisotropy in strontium borate crystals // *Appl Opt.* – 2014. – **53**, № 8. – P. 1620–1628.

Одержано 24.07.2014