

МІНІСТЕРСТВО ОСВІТИ УКРАЇНИ
ІНСТИТУТ ФІЗИЧНОЇ ОПТИКИ

На правах рукопису

СОПРУНЮК
Віктор Петрович

КРИСТАЛООПТИЧНІ ТА ПРУЖНІ ВЛАСТИВОСТІ
КРИСТАЛІВ A_2BX_4 ($A = Cs, N(CH_3)_4, NH_3C_3H_7, NH_3C_2H_5$;
 $B = Fe, Hg, Cu, Mn, ; X=Cl$) ПРИ СТРУКТУРНИХ
ФАЗОВИХ ПЕРЕХОДАХ.

01.04.05. - Оптика, лазерна фізика

А в т о р е ф е р а т

дисертації на здобуття наукового ступеня
кандидата фізико-математичних наук

ЛЬВІВ - 1997



Дисертацією є рукопис.

Робота виконана в Інституті фізичної оптики Міністерства освіти України.

Наукові керівники: доктор фізико-математичних наук,
професор Влох Орест Григорович
доктор фізико-математичних наук
Кітик Андрій Васильович

Офіційні опоненти: доктор фізико-математичних наук,
професор Левицький Роман Романович
доктор технічних наук,
професор Готра Зенон Юрійович

Провідна організація: Чернівецький державний університет
ім.Ю.Федьковича Міносвіти України.

Захист відбудеться " 8 " квітня 1997 р. о 15³⁰ год. на
засіданні Спеціалізованої вченої ради Д.04.07.01 при Інституті
фізичної оптики за адресою: 290005, м. Львів, вул. Драгоманова 23.

З дисертацією можна ознайомитися в бібліотеці Інституту
фізичної оптики.

Автореферат розісланий " 6 " березня 1997 р.

Вчений секретар

Спеціалізованої вченої ради

доктор фізико-математичних наук

Болеста І.М.

ЗАГАЛЬНА ХАРАКТЕРИСТИКА РОБОТИ

Актуальність теми. Структурні фазові переходи (ФП) в сегнетоелектриках та сегнетоеластиках становлять один з напрямків сучасної кристалофізики, який продовжує інтенсивно розвиватися. Під структурними сегнетоелектричними та сегнетоеластичними ФП звичайно розуміють зміну симетрії кристалічної ґратки, яка відбувається при певних критичних значеннях параметрів зовнішніх впливів (температури, гідростатичного тиску, механічного напруження тощо) з виникненням макроскопічної спонтанної поляризації чи деформації. В результаті проведення теоретичних та експериментальних досліджень сегнетоелектриків та сегнетоеластиків був сформульований динамічний підхід для опису таких ФП. В його основі лежить концепція м'якої моди, частота якої прямує до нуля в точці переходу, приводячи таким чином до втрати стійкості кристалічної ґратки. Динамічна модель стала вагомим доповненням існуючої феноменологічної теорії Ландау. Відкриття в середині сімдесятих років неспівмірних фаз (НФ) стало подальшим потужним поштовхом у розвитку фізики структурних ФП. В низці матеріалів було виявлено структурно модульовані фази з періодом, некрратним (неспівмірним) періоду ґратки вихідної фази. З точки зору динамічної моделі виникнення НФ пов'язане з конденсацією м'якої моди на зірках неліфшицевого типу, приводячи, таким чином, до виникнення просторово неоднорідної структури з модульованою спонтанною деформацією або поляризацією. Динаміка ґратки НФ суттєво відрізняється від звичайних співмірних структур. У НФ в результаті розщеплення дисперсійної гілки м'якої моди утворюються два нових типи коливань - амплітудон і фазон, які проявляються в макроскопічних властивостях НФ, включаючи кристалооптичні та акустичні. Саме ці властивості є дуже чутливими до ФП і

ІНІВ ім. В. Стефаніка
АН України

через те використовуються для їх дослідження. На основі аналізу температурних аномалій кристалооптичних та акустичних параметрів можна отримати важливу інформацію про природу НФ. Особливістю даної роботи є те, що методи кристалооптики та акустики застосовуються тут у поєднанні з впливом гідростатичного тиску на неспівмірно модульовані структури, зокрема, досліджується поведінка НФ як в області ФП, так і поблизу полікритичних точок на їх фазових діаграмах стану. Слід зазначити, що експериментальні труднощі, які зустрічаються в процесі таких досліджень, спричинилися до того, що ця галузь виявилася дуже слабо розвинута. Це, очевидно, є однією з причин актуальності вибраного напрямку даної роботи.

Поруч з цим можна було сподіватися на ефективність застосування пружнодинамічних методів для вивчення ультранизькочастотної дисперсії пружних властивостей в області ФП у структурно модульовані фази. Попередні дослідження структурного ФП в кристалах KSCN привели до неочікуваного результату. Було виявлено ультранизькочастотну дисперсію ультразвуку в області частот 1-20 Гц з характерними аномально великими часами релаксації $\tau \sim 0.1-1$ с, яку неможливо описати класичним релаксаційним механізмом Ландау-Халатнікова. Для її пояснення була запропонована модель термічного дифузійного центрального піку [Schranz W., Havlik D. // Phys.Rev.Lett. - 1994. - v.73. - p.2575-2582.]. Однак питання, чи можна вважати таку модель достатньо універсальною стосовно різних типів ФП, залишалося не з'ясованим. Саме тому актуальність проведення відповідних досліджень є очевидною.

Метою роботи є вивчення природи структурних ФП та полікритичних точок кристалів групи A_2BX_4 ($A = Cs, N(CH_3)_4$,

$\text{NH}_3\text{C}_3\text{H}_7$, $\text{NH}_3\text{C}_2\text{H}_5$; $\text{B} = \text{Fe}, \text{Hg}, \text{Cu}, \text{Mn}$; $\text{X} = \text{Cl}$) кристалооптичними, акустичними та пружньодинамічними методами.

Наукова новизна

1. Вперше проведено дослідження впливу гідростатичного тиску на двозаломлюючі та пружні властивості неспівмірних сегнетоеластичних кристалів $[\text{N}(\text{CH}_3)_4]_2\text{FeCl}_4$ та Cs_2HgCl_4 . На фазових Р,Т-діаграмах вказаних кристалів виявлено існування низки потрійних точок, в яких зникають структурно модульовані фази, включаючи неспівмірні. В межах феноменологічної теорії проведено розгляд аномальної поведінки їх двозаломлюючих та пружних властивостей в області ФП та полікритичних точок.

2. Пружньодинамічним методом досліджено температурні та дисперсійні залежності низькочастотних (1 - 30 Гц) пружних сприйнятливостей в області неспівмірних ФП шаруватих кристалів $(\text{NH}_3\text{C}_3\text{H}_7)_2\text{MnCl}_4$ та структурного ФП шаруватих кристалів $(\text{NH}_3\text{C}_2\text{H}_5)_2\text{MnCl}_4$. Проведено феноменологічний опис пружних властивостей даних кристалів в межах моделі термічного дифузійного центрального піку.

3. В результаті низькочастотних пружньодинамічних досліджень невластивого неспівмірного сегнетоеластика $[\text{N}(\text{CH}_3)_4]_2\text{CuCl}_4$ вперше отримано температурну залежність компоненти пружної сприйнятливості S_{55} в області неспівмірних ФП та подано опис її аномальної поведінки на основі солітонної моделі.

Наукова та практична цінність

1. Розроблено методики досліджень двозаломлюючих та акустичних властивостей кристалів в широкому інтервалі температур (150 - 450 К) та гідростатичних тисків (до 600 МПа), які мають важливе значення при вивченні природи полікритичних явищ у фероїках.

2. Пружнєдинамічні дослідження низькочастотних (1 - 50 Гц) пружних сприйнятливостей кристалів в області ФП, важливі з точки зору вивчення природи теплової дифузійної моди в кристалах та перевірки висновків феноменологічної теорії ФП.

Положення, які виносяться на захист

1. Результати досліджень впливу гідростатичного тиску на аномальну поведінку акустичних та двозаломлюючих властивостей кристалів $[\text{N}(\text{CH}_3)_4]_2\text{FeCl}_4$ та Cs_2HgCl_4 в області ФП. Виявлення потрібних точок, в яких зникають структурно модульовані співмірні та неспівмірні фази, на фазових Р,Т-діаграмах цих кристалів.
2. Феноменологічний опис аномальної поведінки двозаломлюючих та пружних властивостей кристалів $[\text{N}(\text{CH}_3)_4]_2\text{FeCl}_4$ та Cs_2HgCl_4 в області неспівмірних ФП та полікритичних точок в межах плоскохвильового наближення. Особливості прояву фононних збуджень НФ (амплітуда, фазона та верхньої моди) в оптичних та акустичних властивостях даних кристалів.
3. Результати досліджень температурних та дисперсійних залежностей низькочастотних пружних констант шаруватих кристалів $(\text{NH}_3\text{C}_3\text{H}_7)_2\text{MnCl}_4$ та $(\text{NH}_3\text{C}_2\text{H}_5)_2\text{MnCl}_4$ в області ФП. Виявлення довгочасових релаксаційних процесів в аномальній поведінці низькочастотних пружних властивостей поблизу ФП та феноменологічне пояснення їх на основі механізму термічного дифузійного центрального піку.
4. Температурні та дисперсійні залежності низькочастотних пружних констант невіласного неспівмірного сегнетоеластика $[\text{N}(\text{CH}_3)_4]_2\text{CuCl}_4$ в області ФП. Виявлення аномального пом'якшення компоненти пружної жорсткості $C_{55} = 1/S_{55}$ в

області переходу неспівмірна - співмірна фаза та феноменологічний опис її температурної поведінки в межах солітонної моделі.

Апробація роботи.

Основні результати роботи доповідались і обговорювались на 5-ій Всесоюзній школі-семінарі по фізиці сегнетоеластиків /Ужгород, 1991/, 4-му міжнародному симпозіумі з доменів у фероїках /Відень, Австрія, 1996/, 3-ій європейській конференції по застосуванню діелектриків /Блед, Словенія, 1996/.

Публікації. Результати дисертації викладено у 14 публікаціях в наукових журналах і збірниках.

Особисто автором створена установка для досліджень двозаломлюючих та пружних властивостей кристалів в широкому інтервалі температур та гідростатичних тисків. Проведено експериментальні дослідження пружних та двозаломлюючих властивостей кристалів Cs_2HgCl_4 та $[\text{N}(\text{CH}_3)_4]_2\text{FeCl}_4$ в області ФП та полікритичних точок, а також дослідження ультранизькочастотних пружних властивостей кристалів $[\text{N}(\text{CH}_3)_4]_2\text{CuCl}_4$, $(\text{NH}_3\text{C}_3\text{H}_7)_2\text{MnCl}_4$ та $(\text{NH}_3\text{C}_2\text{H}_5)_2\text{MnCl}_4$ поблизу ФП у структурно модульовані фази. Разом з проф. О.Г.Влохом та д.ф.-м.н. А.В.Кітиком проведено обговорення отриманих результатів та дано відповідну інтерпретацію.

Структура та об'єм роботи. Дисертація складається із вступу, чотирьох розділів, висновків та літератури. Налічує 149 сторінок, 48 рисунків, 1 таблицю та 123 бібліографічні назви.

ОСНОВНИЙ ЗМІСТ РОБОТИ

У вступі обґрунтовано актуальність теми, вказано мету, наукову новизну та практичну цінність даної роботи. Представлено

положення, які виносяться на захист. Реферативно викладено зміст дисертації.

Перший розділ має оглядовий характер. В ньому стисло викладається феноменологічна теорія неспівмірних ФП, зокрема два класичні підходи для опису ФП в НФ, які ґрунтуються на розкладі вільної енергії для випадків просторово однорідного та неоднорідного параметрів порядку. Здійснено аналіз особливостей фононного спектру НФ з введенням понять амплітудної та фазонної мод. Приводиться опис релаксаційного механізму Ландау-Халатнікова, та розглядається вплив флуктуацій та дефектів на характер акустичних аномалій.

На основі феноменологічної теорії проводиться розгляд двозаломлюючих та пружних властивостей сегнетоелектриків та сегнетоеластиків. Далі висвітлюється питання впливу гідростатичного тиску на структурні ФП та умови існування класичної точки Ліфшиця на діаграмах стану неспівмірних діелектриків неліфшицевого типу. Приводяться літературні дані стосовно ультранизькочастотних досліджень пружних властивостей кристалів в області ФП. На прикладі кристалів тіоценату калію (KSCN) викладається теорія термічного дифузійного центрального піку.

Другий розділ присвячений методикам досліджень кристалооптичних, акустичних та пружнодинамічних властивостей кристалів, які використовуються в процесі виконання роботи.

В ньому приведені функціональні схеми установок для дослідження швидкостей ультразвукових хвиль методами Пападакіса та автоциркуляції. Проведений аналіз технічних характеристик цих методів, а також подані рекомендації на рахунок вибору робочої частоти, діаметра п'єзоперетворювача та вибору проміжного шару між кристалом і п'єзоперетворювачем (склейки). В

умовах дії гідростатичного тиску на кристал розглянуто особливості виміру пружних властивостей кристалів.

Для дослідження двозаломлюючих властивостей кристалів використано метод Сенармона. Приведена функціональна блок-схема відповідної установки. Здійснено аналіз впливу гідростатичного тиску і температури на точність вимірювання двозаломлення.

В цьому ж розділі описана установка для досліджень акустичних і кристалооптичних властивостей кристалів під дією гідростатичного тиску, а також розглянуто методи виміру ультранизькочастотних властивостей кристалів. Описано метод трьохточкового згину та метод паралельного стиску, які дозволяють проводити такі виміри.

В третьому розділі представлено результати оптичних та акустичних досліджень кристалів $[N(CH_3)_4]_2FeCl_4$ та Cs_2HgCl_4 в області ФП та полікритичних точок разом з їх аналізом в межах феноменологічної теорії Ландау. Приводяться основні фізичні властивості кристалів $[N(CH_3)_4]_2FeCl_4$ та Cs_2HgCl_4 та характеристики наявних в них ФП. Для випадку поширення оптичного випромінювання вздовж кристалографічної осі обох кристалів визначені ізобаричні температурні залежності змін оптичного двозаломлення. При низьких тисках вони характеризуються зламами в околі переходу з парафазі в НФ ($T=T_1$), а в ділянці переходів у співмірно модульовані фази спостерігаються стрибки величини двозаломлення. Цей факт підтверджує існування переходів другого та першого роду відповідно. Незмінність характеру температурних залежностей оптичного двозаломлення в НФ при зростанні гідростатичного тиску вказує на те, що поведінка оптичного двозаломлення обумовлена лише вкладом амплітуди параметра порядку і

практично не залежить від його фази. Цей висновок знаходить своє тлумачення в межах феноменологічної теорії.

На основі проведених досліджень отримані фазові P - T -діаграми обох кристалів. Із зростанням гідростатичного тиску спостерігається зсув усіх ФП у високотемпературну область. При цьому температурні області існування усіх структурно модульованих фаз, включаючи неспівмірні, звужуються і зникають в потрібних точках. Зокрема, при $P_k = 150$ МПа та $T_k = 295$ К для кристалу $[N(CH_3)_4]_2FeCl_4$ і при $P_k = 140$ МПа та $T_k = 220$ К для кристалу Cs_2HgCl_4 спостерігається злиття ліній неспівмірних ФП $T_i(P)$ та $T_c(P)$ у лінію співмірних ФП $T_o(P)$. Таким чином, при значеннях тиску вище критичного ($P > P_k$) в обох кристалах спостерігається безпосередній перехід із вихідної фази у власну сегнетоеластичну фазу. Неперервність змін оптичного двозаломлення в околі T_o вказує на те, що цей ФП є переходом другого роду.

В доповнення до оптичних досліджень здійснено акустичні дослідження кристалів $[N(CH_3)_4]_2FeCl_4$ та Cs_2HgCl_4 . Прогнозування можливих результатів цих досліджень стосовно поведінки швидкостей та загасання поздовжніх та поперечних ультразвукових хвиль в області неспівмірних ФП здійснено на основі феноменологічного підходу. Встановлено, що при цьому вклад амплітудної моди в швидкість та загасання повинен спостерігатись в поздовжніх ультразвукових хвилях, тоді як фазон та верхня мода могли б проявлятися в поперечних ультразвукових хвилях. Цей висновок підтвердився результатами експерименту. Зокрема, для поздовжньої хвилі V_3 кристалу $[N(CH_3)_4]_2FeCl_4$ та V_2 кристалу Cs_2HgCl_4 виявлено її аномальне зменшення при наближенні до переходу парафаза-НФ, що відповідає ангармонічній взаємодії ультразвуку з амплітудою. В той же час фазон та верхня мода проявляють себе

в швидкості та загасанні поперечних хвиль V_4 та V_6 , відповідно, причому їх вклади стають відчутними при наближенні до переходу в співмірну фазу. На прикладі кристалу $[(\text{N}(\text{CH}_3)_4)_2\text{FeCl}_4]$ в роботі показано, що під впливом гідростатичного тиску вклад фазона в пружні властивості посилюється, тоді як вклад верхньої моди послаблюється. Цей експериментальний факт підтверджує суттєву залежність частот фононних збуджень від хвильового вектора модуляції, який, як відомо, при зростанні гідростатичного тиску змінює свою величину від околу границі зони Бріллюена до $1/3$ вектора оберненої ґратки.

З'ясовано питання про вплив м'якого оптичного фону в центрі зони Бріллюена на аномальну поведінку швидкостей поперечних ультразвукових хвиль V_5 ($[(\text{N}(\text{CH}_3)_4)_2\text{FeCl}_4]$) та V_4 ($(\text{Cs}_2\text{HgCl}_4)$). Власне його конденсація при високих тисках обумовлює існування безпосереднього ФП із високотемпературної у власну сегнетоеластичну фазу. При наближенні до потрібної точки виявлено глобальне пом'якшення відповідних пружних констант, що є наслідком білінійної перехресної взаємодії параметра порядку та відповідних компонент зсувної деформації. Показано, що при тисках $P > P_k$ температурні залежності швидкостей V_5 та V_4 цих кристалів описуються законом Кюрі-Вейса.

В четвертому розділі представлені результати досліджень пружних властивостей кристалів $[(\text{N}(\text{CH}_3)_4)_2\text{CuCl}_4]$, $(\text{NH}_3\text{C}_3\text{H}_7)_2\text{MnCl}_4$ та $(\text{NH}_3\text{C}_2\text{H}_5)_2\text{MnCl}_4$, одержані пружньодинамічним та ультразвуковим методами.

Зокрема, в шаруватих кристалах $(\text{NH}_3\text{C}_2\text{H}_5)_2\text{MnCl}_4$ методом трьохточкового згину отримані температурні та дисперсійні (1 - 12 Гц) залежності дійсної та уявної частин ефективних модулів пружності (модулів Юнга) в області низькотемпературного структурного ФП при $T_2 = 225$ К, а також проведені

ультразвукові дослідження для поздовжньої та поперечної мод. Виявлено, що як низькочастотні модулі Юнга так і високочастотні пружні константи аномально і практично стрибкоподібно зменшуються при ФП. Спостерігається також різке зростання втрат. До цього слід додати, що дійсна та уявна частини модулів пружності характеризуються сильною частотною залежністю в області 1-12 Гц, засвідчуючи наявність додаткового релаксаційного механізму з аномально великим часом релаксації $\tau_{\eta} \sim 0.1-1$ с. Час же релаксації параметру порядку τ_{η} , як випливає з результатів ультразвукових досліджень, становить $\tau_{\eta} \sim 10^{-10}$ с, що не може привести до дисперсії в області низьких частот. Незвичайна поведінка пружних властивостей даного кристалу в низькочастотній області пояснюється на основі моделі термічного дифузійного центрального піку, в основі якої лежить температурно-флуктуаційний механізм. Зрозуміло, що температурні флуктуації є набагато повільніші від флуктуацій параметра порядку, які є основою механізму Ландау-Халатнікова. В результаті при зміні частоти спостерігається ряд переходів, зокрема при $\omega\tau_{th} \ll 1$ вимірюється ізотермічна пружна константа, а при $\omega\tau_{th} \gg 1$ - адіабатична. Області з $\omega\tau_{th} \sim 1$ та $\omega\tau_{\eta} \sim 1$ характеризуються сильною дисперсією, а при $\omega\tau_{\eta} \gg 1$ проходить фактичне пригнічення пружних аномалій, обумовлених релаксаційними механізмами. Цим, очевидно, пояснюється відсутність аномалій у пружних константах при $T=T_2$, які були виміряні методом Бріллоєнівського розсіяння, оскільки в цьому випадку $\omega\tau_{\eta} \gg 1$.

В результаті низькочастотних пружнєдинамічних досліджень шаруватого кристалу $(\text{NH}_3\text{C}_3\text{H}_7)_2\text{MnCl}_4$ в області неспівмірних ФП виявлено низькочастотну дисперсію пружних аномалій з характерними часами релаксації того ж самого порядку, що і у випадку кристалів $(\text{NH}_3\text{C}_2\text{H}_5)_2\text{MnCl}_4$. Тим самим у роботі

показано, що прояв термічного дифузійного механізму має універсальний характер незалежно від типу ФП. Виявлено також, що характер пружних аномалій поблизу T_1 та T_c суттєво відмінний, хоча зміна симетрії при цих ФП є аналогічною. Асиметрична аномальна поведінка дійсної та уявної частин комплексних ефективних модулів пружності пояснюється вагомими ангармонізмами, які проявляються в сильній температурній залежності коефіцієнтів зв'язку для перехресної взаємодії компонент деформації з параметром порядку.

В результаті пружнодинамічних досліджень невластного неспівмірного сегнетоеластика $[N(CH_3)_4]_2CuCl_4$ при кількох геометріях експерименту отримано температурні залежності ефективних пружних констант. Показано, що лише ефективні пружні константи, які містять вклад компоненти пружного модуля S_{55} , мають глобальне пом'якшення в області переходу неспівмірна - співмірна фаза. На основі експериментальних даних вперше отримано температурну залежність компоненти пружної сприйнятливості S_{55} . Поблизу ФП НФ - співмірна сегнетоеластична фаза характер залежності $S_{55}(T)$ є аналогічний температурній залежності діелектричної проникливості невластних неспівмірних сегнетоелектриків. Зокрема, поведінка $S_{55}(T)$ в області T_c описується законом Кюри-Вейса $(\Delta S_{55} \sim (T - T_c)^{-\gamma})$, $\gamma = 0.97 \pm 0.02$ з виразним аномальним температурним гістерезисом. Під впливом механічного навантаження, яке індукуює в кристалі компоненту деформації U_5 , величина аномального піку S_{55} при $T = T_c$ зменшується і зсувається в область високих температур. Отримані експериментальні результати добре пояснюються в межах солітонної моделі, запропонованої Холаковським та Дворжаком для невластних неспівмірних сегнетоелектриків, яка в даній роботі була адаптована для випадку невластних неспівмірних

сегнетоеластиків. На основі проведеного аналізу зроблено важливий висновок про те, що солітони в кристалі під впливом динамічного навантаження перебувають лише в осцилюючому русі навколо своїх рівноважних положень, а не рухаються вільно на великі відстані, як це впливає з інших солітонних моделей.

Основні результати та висновки.

1. Розроблено методику та створено установку для дослідження двозаломлюючих та акустичних властивостей кристалів в широкому інтервалі температур (150 - 450 К) при високих гідростатичних тисках (до 600 МПа).
2. Досліджено вплив гідростатичного тиску на поведінку двозаломлюючих та пружних властивостей кристалів Cs_2HgCl_4 та $[\text{N}(\text{CH}_3)_4]_2\text{FeCl}_4$ в області ФП у структурно модульовані фази. Показано, що із зростанням гідростатичного тиску модульовані фази цих кристалів, включаючи неспівмірні, зникають в потрійних точках. Визначені координати потрійних точок на їх P,T-діаграмах стану.
3. В межах феноменологічної теорії проаналізовано аномальну поведінку двозаломлюючих та пружних властивостей кристалів $[\text{N}(\text{CH}_3)_4]_2\text{FeCl}_4$ та Cs_2HgCl_4 в околі ФП та полікритичних точок. Показано, що аномалії двозаломлення в області неспівмірних ФП обумовлені вкладом лише амплітуди параметра порядку, тоді як пружні властивості даних кристалів визначаються поведінкою характерних для НФ фононних збуджень. Виявлено, що амплітудон проявляється в поздовжньому ультразвуці, тоді як фазон та верхня мода дають відчутний вклад в зміни швидкостей та загасання лише поперечних ультразвукових хвиль. Показано, що при зростанні гідростатичного тиску вклад фазона посилюється, а верхньої

- моди - послаблюється за рахунок зміни хвильового вектора модуляції.
4. В околі потрійних точок на P,T-діаграмах стану кристалів Cs_2HgCl_4 та $[\text{N}(\text{CH}_3)_4]_2\text{FeCl}_4$, в яких зникають їх НФ, виявлено глобальне пом'якшення пружного модуля $C_{55} = \rho V_5^2$. Показано, що аномальна поведінка цієї пружної константи при високих тисках описується законом Кюрі-Вейса, що підтверджує існування власного сегнетоеластичного переходу.
 5. Пружнодинамічним методом вивчено низькочастотні пружні властивості шаруватих кристалів $(\text{NH}_3\text{C}_3\text{H}_7)_2\text{MnCl}_4$ та $(\text{NH}_3\text{C}_2\text{H}_5)_2\text{MnCl}_4$ в області їх структурного та неспівмірних ФП, відповідно. Встановлено, що незважаючи на принципово відмінну природу ФП в даних кристалах, аномалії їх пружних властивостей характеризуються суттєвою ультранизькочастотною дисперсією в області 1-12 Гц, засвідчуючи, таким чином, існування додаткового релаксаційного механізму з характерними аномально великими часами релаксації $\tau_{\text{th}} \sim 0.1-1$ с. Показано, що температурні та дисперсійні залежності цих кристалів якісно добре описуються в межах феноменологічної моделі термічного дифузійного центрального піку. Зокрема, вказана область частот є фактично областю переходу від умов, при яких вимірюються ізотермічні пружні константи ($\omega\tau_{\text{th}} \ll 1$), до умов визначення адіабатичних пружних констант ($\omega\tau_{\text{th}} \gg 1$).
 6. В результаті ультранизькочастотних пружнодинамічних досліджень отримано температурну залежність компоненти пружної сприйнятливості S_{55} в області ФП невластного неспівмірного сегнетоеластика $[\text{N}(\text{CH}_3)_4]_2\text{CuCl}_4$. Показано, що її аномальна поведінка поблизу переходу НФ - співмірна фаза описується законом Кюрі-Вейса, який впливає із солітонної моделі Холаковського-Дворжака. Доведено, що в умовах

динамічного навантаження фазові солітони перебувають лише в осцилюючому русі навколо своїх рівноважних положень, а не зміщуються на великі відстані, як це впливає з ряду інших солітонних моделей.

Основні матеріали дисертації опубліковані в роботах:

1. Влох О.Г., Китык А.В., Мокрый О.М., Сопрунюк В.П. Влияние гидростатического давления на упругие свойства несоразмерного сегнетоэластика $[N(CH_3)_4]_2FeCl_4$ в области фазовых переходов // Тезисы докладов 5-ой Всесоюзной школы-семинара по физике сегнетоэластиков. - Ужгород. - 1991. - с.98.
2. Влох О.Г., Китык А.В., Мокрый О.М., Сопрунюк В.П. Двупреломляющие и упругие свойства кристаллов Cs_2HgCl_4 в области фазовых переходов // Тезисы докладов 5-ой Всесоюзной школы-семинара по физике сегнетоэластиков. - Ужгород. - 1991. - с.100.
3. Китык А.В., Сопрунюк В.П., Влох О.Г., Олексеюк И.Д., Пирого С.А. Акустические исследования фазовой Р,Т-диаграммы кристаллов Cs_2HgCl_4 // ФТТ. - 1992. - т.34, № 7. - с.2044-2052.
4. Влох О.Г., Китык А.В., Сопрунюк В.П. Влияние гидростатического давления на упругие свойства кристаллов $[N(CH_3)_4]_2FeCl_4$ // ФТТ. - 1992. - т.34, № 2. - с.513-519.
5. Китык А.В., Сопрунюк В.П., Влох О.Г., Олексеюк И.Д., Пирого С.А. Фазовая Р,Т-диаграмма неспівмірного сегнетоэластика Cs_2HgCl_4 // УФЖ. - 1992. - т.37, № 7. - с.1082-1086.

6. Kityk A.V., Soprounyuk V.P. and Vlokh O.G. The pressure-temperature phase diagram of $[N(CH_3)_4]_2FeCl_4$ crystals: birefringent, elastic and electroacoustic properties // J. Phys.: Cond.Matt. - 1993. - v.5. - p.235-246.
7. Kityk A.V., Mokry O.M., Soprounyuk V.P., Vlokh O.G. Optical birefringence and acoustical properties near the phase transition and triple points incommensurate proper ferroelastic Cs_2HgBr_4 , Cs_2CdBr_4 and Cs_2HgCl_4 crystals // J. Phys: Cond. Matt. - 1993. - v.5. - p.5189-5200.
8. Кітик А.В., Сопрунюк В.П. Акустичні та оптичні дослідження фазової Р,Т-діаграми неспівмірних сегнетоеластичних кристалів $[N(CH_3)_4]_2FeCl_4$ // УФЖ. - 1993. - т.38, №1. - с.147-155.
9. Kityk A.V., Soprounyuk V.P., Fuith A., Schranz W., Warhanek H. Low frequency elastic properties of the incommensurate ferroelastic $[N(CH_3)_4]_2CuCl_4$ // Phys. Rev. B1. - 1996. - v.53, №10. - p.6337-6344.
10. Kityk A.V., Soprounyuk V.P., Schranz W., Fuith A., Warhanek H. Unusual low frequency elastic anomalies around the upper incommensurate phase of $[NH_3C_3H_7]_2MnCl_4$ // Phys. Rev. B1. - 1996. - v.53, №13. - p.8323-8328.
11. Kityk A.V., Schranz W., Fuith A., Soprounyuk V.P., Warhanek H. Acoustic dispersion of $[NH_3C_2H_5]_2MnCl_4$ near the structural transition 226 K // Phys. Rev. B1. - 1996. - v.53, №6. - p.3055-3060.
12. Kityk A.V., Soprounyuk V.P., Fuith A., Schranz W., Warhanek H. Low frequency elastic properties of the incommensurate ferroelastic $[N(CH_3)_4]_2CuCl_4$ // Abstracts of International

- Symposium on Ferroic Domains and Mesoscopic Structures (ISFD 4). - Vienna (Austria). - 1996. - p.69.
13. Kityk A.V., Soprounyuk V.P., Schranz W., Fuith A., Warhanek H. Unusual low frequency elastic anomalies around the upper incommensurate phase of $[\text{NH}_3\text{C}_3\text{H}_7]_2\text{MnCl}_4$ // Abstracts of International Symposium on Ferroic Domains and Mesoscopic Structures (ISFD 4). - Vienna (Austria). - 1996. - p.134.
14. Kityk A.V., Schranz W., Fuith A., Soprounyuk V.P., Warhanek H. Acoustic dispersion of $[\text{NH}_3\text{C}_2\text{H}_5]_2\text{MnCl}_4$ near the structural phase transition at 226 K // Abstracts of European conference on applications of polar dielectrics (ECAPD-3). - Bled (Slovenia). - 1996. - p.95.

Soprounyuk V.P. Crystalloptic and elastic properties of A_2BX_4 crystals ($A = Cs, N(CH_3)_4, NH_3C_3H_7, NH_3C_2H_5$; $B = Fe, Hg, Cu, Mn$; $X = Cl$) at the structural phase transitions.

Thesis applied for Ph.D. in Physics and Mathematics on speciality 01.04.05. - Optics, Laser Physics, Institute of Physical Optics, Ministry of Education of Ukraine, Lviv, 1997.

Defends 14 scientific paper containing the results of crystalloptical, ultrasonic and low-frequency elastodynamical investigations of A_2BX_4 group's crystals ($A = Cs, N(CH_3)_4, NH_3C_3H_7, NH_3C_2H_5$; $B = Fe, Hg, Cu, Mn$; $X = Cl$) in the region of phase transition into structurally modulated phases and polycritical points on the hydrostatic pressure-temperature phase diagrams. Obtained results are considered in the framework of phenomenological theory using plane wave and soliton models.

Сопрунюк В.П. Кристаллооптичні та еластичні властивості кристалів A_2BX_4 ($A = Cs, N(CH_3)_4, NH_3C_3H_7, NH_3C_2H_5$; $B = Fe, Hg, Cu, Mn$; $X = Cl$) при структурних фазових переходах.

Дисертація на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук по специальности 01.04.05 - оптика, лазерная физика. Институт физической оптики, Министерство образования Украины, Львов, 1997.

Защищается 14 научных работ, содержащих результаты кристаллооптических, ультразвуковых и низкочастотных упругодинамических исследований кристаллов группы A_2BX_4 ($A = Cs, N(CH_3)_4, NH_3C_3H_7, NH_3C_2H_5$; $B = Fe, Hg, Cu, Mn$; $X = Cl$) в области фазовых переходов у структурно-модулированные фазы, а также поликритических точек на диаграммах состояния гидростатическое давление - температура. Полученные результаты обсуждаются на основе феноменологической теории в рамках плосковолновой и солитонной моделей.

Ключові слова: кристаллооптика, акустика, неспівмірні фази, фазові переходи, амплітудон, фазон.

435589

4537219
АВ 37.219

Підписано до друку 25.02.1997 р. Формат 60 x 84/16. Друк офсет. Папір офсетн. Умов. друк. арк. 1,16. Наклад 100 прим. Зам. 169.
ТОВ "Брати Сиротинські і К", Львів, вул. Коперника, 17.