

## ВЗАЄМОДІЯ МОДУЛЬОВАНОЇ СТРУКТУРИ З ДЕФЕКТАМИ У КРИСТАЛАХ З НЕСУМІРНОЮ ФАЗОЮ

С. Свелеба, І. Катеринчук, О. Семотюк, І. Куньо  
Львівський національний університет імені Івана Франка,  
кафедра нелінійної оптики, вул. ген. Тарнавського, 107, Львів  
(Отримано 27 жовтня 2004 р.; в остаточному вигляді — 18 лютого 2005 р.)

Розглянуто експериментальні та теоретичні аспекти взаємодії несумірної структури з дефектами в несумірних фазах на прикладі кристалів класу  $[N(\text{CH}_3)_4]_2\text{MeCl}_4$ ,  $\text{Me} = \text{Cu}, \text{Zn}, \text{Fe}$ . Досліджено три випадки такої взаємодії залежно від співвідношення швидкості руху модульованої структури та швидкості дефектів і домішок у зразку.

**Ключові слова:** несумірна фаза, модульована структура, інваріант Ліфшиця, “в’язка” взаємодія, солітон, просторовий розподіл густини дефектів.

PACS number(s): 78.20.Fm, 78.20.Jq

### ВСТУП

У середині сімдесятих років у кристалічних діелектриках був відкритий новий тип модульованої структури з періодом модуляції, некрратним періодові елементарної комірки вихідної фази. З погляду феноменологічної теорії, відповідні фазові переходи (ФП) пов’язані з конденсацією м’якої моди на зірках неліфшицевого типу. При цьому модуль хвильового вектора модуляції може змінюватися безперервно з температурою, тиском та іншими факторами. Структури, які характеризуються векторами неліфшицевого типу, назвали несумірними (НС). Власне з НС фазою пов’язане виникнення принципово нових понять у фізиці діелектриків, таких, як надпросторові групи, “чортова драбина”, термооптична пам’ять, глобальний температурний гістерезис, фазові солітони, амплітудно-фазонне розщеплення тощо. Вивченню несумірно впорядкованих систем присвячено багато експериментальних та теоретичних праць. Водночас природа цього незвичайного псевдокристалічного стану в багатьох аспектах далека від глибокого розуміння.

Дослідження фазової діаграми в системі, яка характеризується потенціалами, що містять інваріанти Ліфшиця, найліпше провести на прикладі такого потенціалу [1]:

$$\Phi = \int dr \left( \alpha \rho^2 + \beta \rho^4 + \alpha' \rho^n \cos n\varphi - \sigma \rho^2 \frac{\partial \varphi}{\partial z} + \delta \left( \frac{\partial \rho}{\partial z} \right)^2 + \rho^2 \left( \frac{\partial \varphi}{\partial z} \right)^2 \right), \quad (1)$$

де  $\rho$ ,  $\varphi$  — компоненти параметра порядку,  $\beta > 0$ ,  $\alpha' > 0$ ,  $\delta > 0$  — сталі,  $z$  — координата, в напрямі якої існує несумірна модуляція.

Коефіцієнт  $\alpha$  характеризує величину ізотропних

взаємодій у системі, а  $\alpha'$  — анізотропних. Такого типу анізотропний член часто називають інваріантом Дзялошинського. Урахування цього члена є важливим у проблемі існування модульованих фаз.

За сталої амплітуди параметра порядку ( $\rho = \text{const}$  [2]) рівняння мінімізації потенціалу ( $\partial \Phi / \partial \varphi = 0$ ) стає рівнянням математичного маятника

$$\frac{\partial^2 \varphi}{\partial z^2} + n v \sin n\varphi = 0,$$

$$\text{де } v = \alpha' \frac{\rho^{n-2}}{2\delta}.$$

Його можна звести до вигляду:  $\frac{\partial \varphi}{\partial z} = q \left( 1 - k^2 \sin^2 n \frac{\varphi}{2} \right)^{1/2}$ . Цей результат використовують для опису модульованої структури при  $k^2 \ll 1$ , тобто в синусоїдальному режимі, отримуємо:

$$\rho^2 = \frac{(\alpha_0 - \alpha)}{2\beta}, \quad \varphi = k_0 x, \quad \Phi = -\frac{(\alpha_0 - \alpha)}{4\beta}, \quad k_0^2 = \frac{\sigma^2}{4\delta^2},$$

де  $\alpha = \alpha_0(T - T_0)$ ,  $k^2 = \frac{4v}{q^2}$ ,  $\alpha_0$  — стала,  $k_0$  — хвильовий вектор модульованої структури.

В умовах існування солітонного режиму, тобто  $k^2 \cong 1$ , отримуємо такі розв’язки:

$$\rho^2 = -\frac{\alpha}{(2\beta)}, \quad \varphi = \frac{2}{n} \text{am} \left( \frac{2}{n} qx, k \right),$$

$$\Phi = -\beta \rho^4 - \alpha' \rho^n \frac{2 - k^2}{k^2}, \quad q^2 = \frac{\pi k_0}{2E},$$

де  $K$  і  $E$  — повні нормальні еліптичні інтеграли Лежандра першого і другого роду відповідно,  $\text{am}((2/n)qx, k)$  — амплітуда. Поведінка  $\varphi(x)$ , отри-

мана числовим інтегруванням, свідчить, що сумірні ділянки сталої фази розділені фазовими солітонами. Коли  $k^2 = 1$ , відбувається фазовий перехід із несумірної в сумірну фазу, при цьому  $\alpha = \alpha_s = -2\beta(\alpha/\alpha')^{2/(n-2)}$ .

На основі сказаного теоретичне обґрунтування послідовності фазових переходів вихідна-несумірна-сумірна фаза будується на існуванні інваріанта Ліфшица при умові, що коефіцієнт  $\alpha$  міняється з температурою, проходячи через нуль у точці фазового переходу, тоді як коефіцієнт  $\alpha'$  слабо змінюється з температурою. Таку послідовність фазових переходів спостерігаємо в багатьох кристалах, зокрема у фторберилат амонію, селенаті калію та ін. Розгляньмо послідовність фазових переходів сумірна ( $C_1$ )-несумірна-сумірна ( $C_2$ ), що виникає, коли коефіцієнт  $\alpha'$  змінюється з температурою, проходячи через нуль, а коефіцієнт  $\alpha$  змінюється слабо. У найпростішому випадку можна покласти  $\alpha = \text{const}$ ,  $\alpha' = \alpha'_T(T - \theta)$ . Суттєво підкреслити, що таку послідовність переходів не можна пояснити на основі термодинамічного потенціалу фази  $C_1$  або  $C_2$ , оскільки групи симетрії цих фаз не є підгрупами одна одної. Необхідно залучити прафазу  $O$ , що у послідовності переходів сама не бере участі, а в експерименті взагалі може не спостерігатись. При цьому обидва фазові переходи ( $T_i$  — температура фазового переходу зі сумірної в НС фазу,  $T_c$  — температура фазового переходу із НС у сумірну фазу) мають характер неперервних переходів. Хвильове число, яке визначає період несумірної надструктури, зазнає немонотонної залежності, перетворюючись у нуль у точках переходу і досягає максимального значення в середині несумірної фази. Тимчасом, як амплітуда несумірної надструктури з температурою практично не змінюється. Тобто послідовність фазових переходів повинна бути зумовлена температурною залежністю коефіцієнта  $\alpha'$  при анізотропному члені [3].

У несумірних фазах проведені діелектричні [4], оптичні [5], рентгеноструктурні [6], ЕПР- [7], ЯМР- [8] дослідження. З огляду на оптичні й діелектричні властивості несумірна структура проявляє себе в ряді специфічних ефектів. Природа спостережуваних ефектів зумовлена як зміною амплітуди, так і фази параметра порядку [9].

У [10] автори дослідили внесок амплітуди параметра порядку в оптичне двопронезаломлення, а безпосереднім внеском фази параметра порядку нехтували. Цей факт обґрунтовується тим, що світло характеризується довжиною хвилі  $\lambda \gg \lambda_0$  ( $\lambda_0 = 2\pi/q_0$ ). Отже, автори не очікували відхилення від планарності й ортогональності, які можуть проявитися в лінійних оптичних властивостях. Але В. А. Головка і А. П. Леванюк у праці [1] звернули увагу на те, що є модуляція власних векторів уздовж осі модуляції, яка уможливує нелінійнооптичні властивості в несумірних фазах. Водночас усереднена точкова група є центросиметричною.

У низці праць [11–14] отримано експериментальні результати, які можна обґрунтувати за умови наявності внеску фази параметра порядку в оптичне дво-

пронезаломлення. До цих результатів слід віднести такі виявлені ефекти: ефекти термооптичної та діелектричної пам'яті; часові зміни фізичних величин при сталій температурі; ефект “в'язкої взаємодії”; термооптичні цикли типу “паралелограм” і т. д.

При наближенні до фазового переходу з несумірної в сумірну фазу несумірна фаза має солітонну структуру, тобто існують сумірні ділянки ( $\rho, \varphi = \text{const}$ ), які розділені регулярно розміщеними солітонами, де фаза змінюється різко. Для опису солітонів Блінц у праці [15] увів поняття густини солітонів:

$$n_s = \frac{d_0}{x_0}, \quad (2)$$

де  $d_0$  — ширина солітона,  $x_0$  — міжсолітонна відстань. Величина  $n_s \rightarrow 1$  з пониженням температури до  $T_c$  змінюється і стрибкоподібно зникає, переходячи в сегнетоелектричну фазу. У статті [15] було запропоновано використовувати  $n_s$  у ролі параметра порядку для опису переходу з НС у сегнетоелектричну фазу. При дослідженні температурних залежностей діелектричної проникливості в режимах нагрівання й охолодження для кристала  $\text{Rb}_2\text{ZnCl}_4$  [16] було виявлено, що аномалії  $\varepsilon(T)$  при фазовому переході  $T_c$  не тільки зсунуті між собою за температурою, а також відрізняються за величиною й характером (при охолодженні аномалія є гладкою, а при нагріванні зазнає стрибкоподібної зміни). Найцікавішим є те, що температурний гістерезис спостерігаємо в широкій температурній ділянці всередині НС фази. При взаємних переходах від кривої нагрівання до кривої охолодження всередині НС фази спостерігалися цикли типу “паралелограм” [16, 17]. Аналогічні результати були також отримані з двопронезаломлення для кристалів  $[\text{N}(\text{CH}_3)_4]_2\text{MeCl}_4$  [5, 18]. Теоретичний аналіз свідчить, що ці ефекти пояснюються динамікою солітонної структури, зокрема головною причиною є процеси нуклеації (зародження) й анігіляції (зникнення) солітонів при зміні температури [11, 19, 20]. Завдяки процесам нуклеації кристал проходить проміжні метастабільні стани (температурні ділянки з постійним значенням фази параметра порядку), які відрізняються між собою густиною солітонів. Такі перехідні стани розділені бар'єрами вільної енергії. Оскільки солітони зароджуються у вигляді ядра з  $n$  солітонів, то для зародження потрібна енергія активації  $E_c$ . Енергія  $E_c$  і радіус ядра  $R_c$  приблизно обернено пропорційні до  $|\Delta\delta|$ , де  $\Delta\delta = \delta - \delta_0$  - відхилення параметра несурозмірності  $\delta$  від його рівноважного значення  $\delta_0$  [13, 14]. При переході до рівноважного стану  $|\Delta\delta| \rightarrow 0$ , а  $E_c \rightarrow \infty$ . Перехід до рівноважного стану через проміжні метастабільні стани проявляється в часових залежностях фізичних характеристик при стабілізації температури в НС фазі [15, 16]. Пояснити релаксаційні процеси до рівноважного стану можна, використовуючи (завдяки подібності опису) релаксаційну криву для хвиль зарядової густини (CDW) [17], яка для нашого випадку матиме вигляд, наведений на рис. 1.

У роботі [21] розрізняли чотири режими релаксації: початкова релаксація, перше проникнення через низькоенергетичний бар'єр, релаксація вниз через послідовність бар'єрів, кінцеве досягнення основного стану.

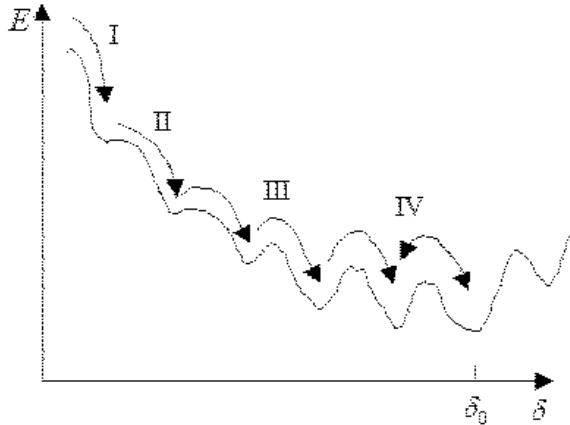


Рис. 1. Залежність енергії від величини параметра несумірності  $\delta$  для релаксаційних процесів до рівноважного стану ( $\delta_0$ ) [16]. Стрілками позначено напрям релаксації, римськими цифрами — режими релаксації: I — початкова, перше проникнення через низькоенергетичний бар'єр, II, III — релаксація вниз через послідовність бар'єрів, IV — досягнення основного стану.

Слід, проте, відзначити, що на гістерезисні й кінетичні явища значно впливають домішки й дефекти, які наявні у зразку. Про це сказано, зокрема, в працях [20, 22]. Збільшення концентрації дефектів сприяє посиленню гістерезису за рахунок пінінгу структури на дефектах. Автори [22] показали, що під впливом дефектів може порушуватись дальній порядок модульованої структури й виникати хаотичний метастабільний стан солітонів. Таку структуру можна вважати сукупністю фрагментів сумірних структур із різними періодами, що приводить до розширення ділянки температурного гістерезису при пониженні швидкості зміни температури під час експерименту [23].

На сьогодні відомі експериментальні результати з дослідження такої взаємодії не тільки в діелектричних кристалах [24], а також для систем із хвилями зарядової густини [25] і в металічних сполуках, для яких спостерігається PLC ефект [26].

При розгляді впливу дефектів слід розрізняти такі можливі випадки : 1) НС модуляція взаємодіє з невпорядкованими нерухомими дефектами (швидкість руху структури  $v_c$  набагато більша від швидкості руху дефектів  $v_d$  ( $v_c \gg v_d$ ) [27, 28]; 2) швидкість дифузії дефектів приблизно дорівнює швидкості зміни руху модульованої структури — виникає “в'язка” взаємодія рухомих дефектів із НС структурою ( $v_d \cong v_c$ ); 3) рухомі дефекти взаємодіють зі статичною НС модуляцією, утворюючи “хвилю густини дефектів” ( $v_d \gg v_c$ ) [29].

### I. ШВИДКІСТЬ РУХУ МОДУЛЬОВАНОЇ СТРУКТУРИ Є НАБАГАТО БІЛЬШОЮ ВІД ШВИДКОСТІ РУХУ ДЕФЕКТІВ ТА ДОМІШОК У КРИСТАЛІ

За умови, коли швидкість зміни модульованої структури є набагато більшою за швидкість дифузії дефектів, спостерігаються ефекти гістерезису фізичних величин. Так, наприклад, поняття глобального гістерезису включають ті властивості, які несумірно модульовані структури проявляють під час зміни температурного ходу від нагрівання до охолодження (або навпаки). Тобто в широкій ділянці несумірної фази криві нагрівання й охолодження не збігаються, а зміна напрямку температурного ходу супроводжується циклами типу “паралелограм” на залежностях діелектричних, оптичних, рентгенівських характеристик (рис. 2).

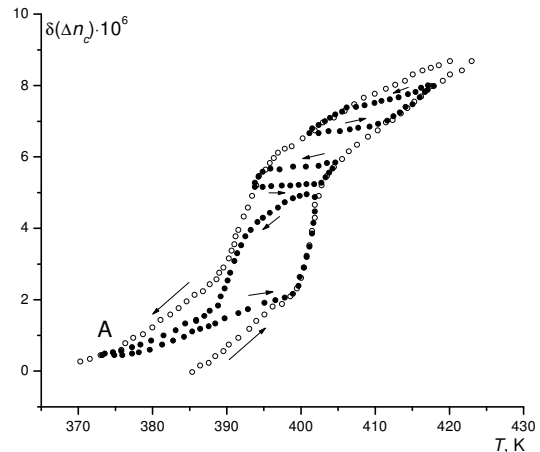


Рис. 2. Температурні цикли типу “паралелограм” та “діелектричної” пам'яті для кристала  $K_2ZnCl_4$  в околі фазового переходу несумірна–сумірна фаза.

Існування температурного гістерезису (ТГ) в надчисних кристалах [30] і результати теоретичного аналізу [31–34] показали, що головною причиною виникнення ТГ є нуклеація — анігіляція солітонів. Солітони зароджуються у вигляді лінзоподібного ядра в одномірному сумірному середовищі. Оскільки, проходячи через солітон, фаза параметра порядку змінюється на  $2\pi/n$ , то водночас зароджується  $n$  солітонів. Для їх зародження необхідна енергія активації, що приводить до появи ТГ. В процесі зародження солітонів кристал буде постійно заповнюватись ними. Перехідні стани, які мають різну кількість солітонів, розділені бар'єрами вільної енергії і є, таким чином, метастабільними станами. Однак динаміка солітонної системи досить складна і включає зіткнення солітонів між собою і з ділянками перетину солітонів (солітонними дислокаціями). Поряд з цим ТГ спостерігається і в сумірних фазах (рис. 3). Для того, щоб установити механізм наявності ТГ в сумірних фазах, проведено дослідження температурного циклювання

несумірна-сумірна фаза (рис. 4). Як об'єкт вибрано кристал  $K_2ZnCl_4$ , несумірна фаза якого є в температурному інтервалі  $T_i = 533$  К і  $T_c = 403$  К. Як видно з рис. 4, при кожному повторному проходженні циклу зменшується температурний гістерезис фазового переходу ( $\Delta T_c = T_c^{heat} - T_c^{cool}$ ), а також температурний інтервал існування глобального ТГ в сумірній фазі. Це свідчить про те, що після першого проходження несумірної фази в сумірній фазі залишаються ділянки несумірної фази — залишкові солітони, які служать зародками несумірної фази, що приводить до зменшення температурного гістерезису при  $T_c$ . Аналогічні результати отримали з діелектричної сприйнятливості кристала  $K_2ZnCl_4$  автори праці [35]. По стало питання, де локалізуються солітони: на кристалічній ґратці чи на дефектах структури. Характер зміни залежності  $\Delta\chi(T) = \chi - \chi_0$  при зміні концентрації домішок  $N_i$  дозволив авторам [32] припустити, що пінінг солітонів відбувається на кристалічній ґратці. Однак пізніше було встановлено, що отримані результати можна пояснити в межах простішої моделі пінінгу солітонів на дефектах структури [33]. Можливість різної інтерпретації одних і тих же явищ стимулювала оптичні дослідження метастабільних станів [24].

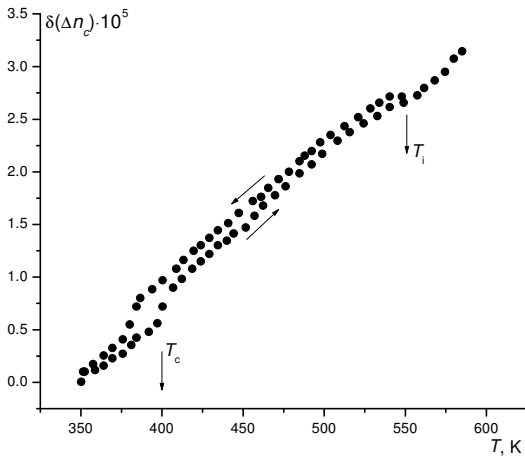


Рис. 3. Глобальний температурний гістерезис приросту двоприменезаломлення для с-зрізу кристала  $K_2ZnCl_4$ , знятий під час нагрівання та охолодження після відпалювання зразка в парафазі.

На рис. 5 показано кінетичні залежності  $\delta(\Delta n)_i$  для різних температур у ділянці  $T < T_c$ , виміряні під час охолодження в НС фазі. При стабілізації температури спостерігалась релаксація  $\delta(\Delta n_i)$  в бік кривої нагрівання. Віддаляючись від  $T_c$ , релаксація  $\delta(\Delta n_i)$  проходить швидше, що пов'язано з нестійкістю переохолодженого стану. Зі збільшенням тривалості відпалу (зменшення кількості солітонів) релаксація  $\delta(\Delta n_i)$  при тій же температурі стабілізації  $T_{st}$  зменшується.

Таким чином, оптичні та діелектричні [31, 36, 37] дослідження підтвердили існування в кристалах  $K_2ZnCl_4$  метастабільного хаотичного стану соліто-

нів, причиною якого є пінінг солітонів на дефектах. Аналогічні результати отримані також для кристалів  $[N(CH_3)_4]_2ZnCl_4$  [38].

Температурний гістерезис параметра несумірності  $\delta c^* = q_c - q_i$ , де  $c^*$  — величина обернена до параметра ґратки кристала  $Rb_2ZnCl_4$ , наведено в статті [6]. Під час переходу від нагрівання до охолодження й навпаки, величина  $\delta c^*$  майже не змінюється. Це свідчить про незмінність густини солітонів на лінії переходів.

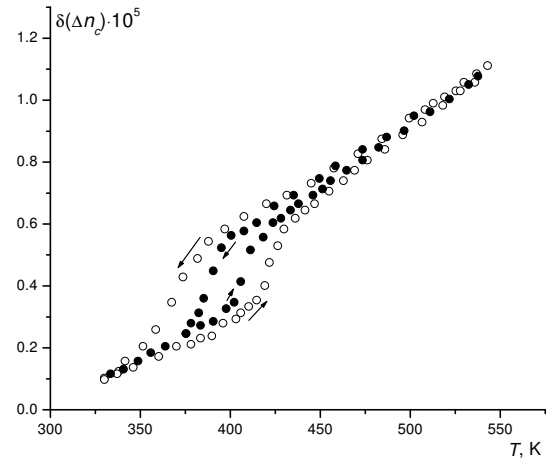


Рис. 4. Температурні залежності двоприменезаломлення для с-зрізу кристала  $K_2ZnCl_4$ , зняті під час нагрівання та охолодження для свіжовирізаного зразка (○) та під час повторного проходження НС-фази (●).

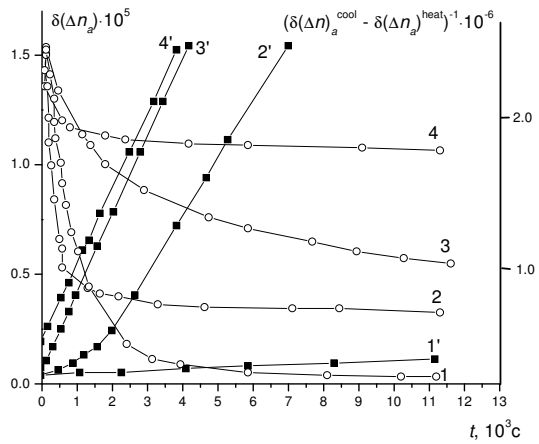


Рис. 5. Кінетичний характер для кристала  $K_2ZnCl_4$  при  $T_1 = 397.5$  К (1);  $T_2 = 393.5$  К (2);  $T_3 = 392$  К (3);  $T_4 = 388.5$  К (4). Криві 1'–4' відповідають часовим залежностям функції для відповідних температур.

Аналогічні цикли типу паралелограма спостерігали також по двошаломлюючих та діелектричних властивостей кристалів  $[N(CH_3)_4]_2MeCl_4$ , ( $Me = Zn, Cu, Co$ ),  $K_2ZnCl_4$ ;  $Rb_2ZnBr_4$ ;  $Cs_2HgBr_4$ ;  $Cs_2CdBr_4$  [18, 39–43]. У сумірній фазі часткові цикли ТГ (“діелектрична” пам'ять) між кривими нагрівання й охолодження по-

лягають у тому, що  $\delta(\Delta n_i)$  повертається в точку А, з якої починалась зміна напрямку температурного ходу (рис. 6). Існування термічного циклу типу “діелектрична” пам’ять у сумірних фазах (нижче  $T_c$ ) підтверджують існування залишкових солітонів, густина

яких є одночасно функцією часу їх анігіляції й температури. У цьому випадку НС структура співіснує із сумірною фазою [44]. Таке співіснування може приводити, зокрема, до наявності циклів типу “паралелограм” у сумірній фазі кристала  $\text{Rb}_2\text{ZnBr}_4$  [42].

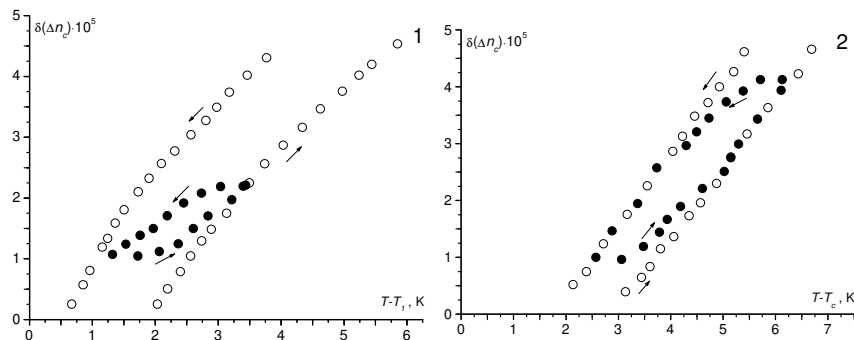


Рис. 6. Температурні залежності приросту оптичного двоприменезаломлення  $\delta(\Delta n_c)$  для кристала  $[\text{N}(\text{CH}_3)_4]_2\text{ZnCl}_4$ , досліджені в режимах охолодження й нагрівання (1) та часткові цикли ТТ всередині НС і сумірної фаз (2).  $T_1 = 275$  К — температура переходу з сегнетоелектричної в сегнетоеластичу фазу,  $T_c = 280$  К.

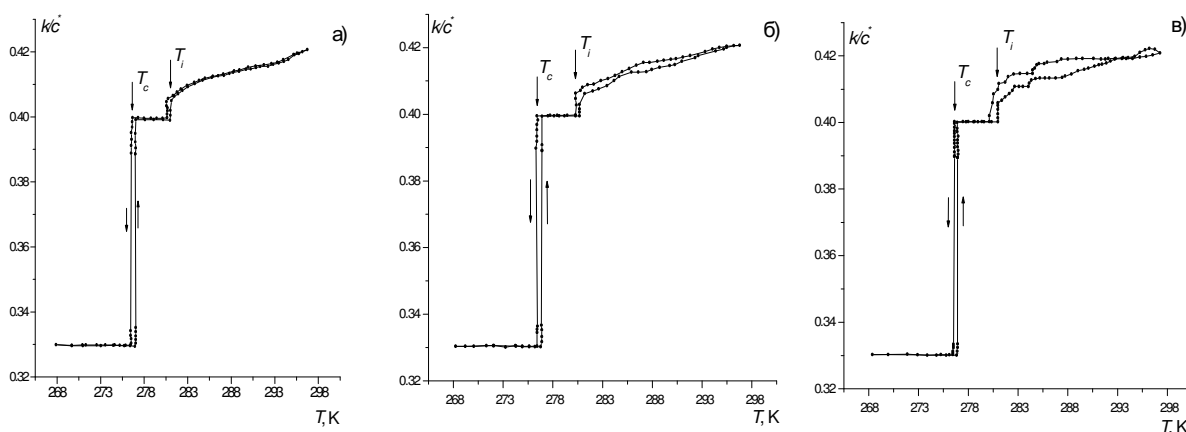


Рис. 7. Температурна залежність  $\delta = k/c^*$  в режимі нагрівання (○) й охолодження (●) для зразків  $[\text{N}(\text{CH}_3)_4]_2\text{ZnCl}_4$ , опромінених рентгенівськими променями протягом часу 0 (а); 1 год (б); 4 год (в).

Відпал зразка у вихідній фазі спричиняє просторовий перерозподіл густини дефектів у зразку, зумовлюючи тим самим зміну величини й температурної ділянки існування глобального гістерезису. Розширити температурні ділянки існування метастабільних станів можна введенням у кристал малорухомих дефектів і домішок. Так, вплив рентгенівського випромінювання на кристали  $[\text{N}(\text{CH}_3)_4]_2\text{MeCl}_4$  ( $\text{Me} = \text{Cu}, \text{Mn}, \text{Zn}, \text{Fe}$ ) викликає зміну в органічному комплексі, що збільшує в зразку малорухомі дефекти [44]. На рис. 7 наведено температурну залежність хвильового вектора несумірності при різних експозиційних дозах рентгенівського опромінювання. Збільшення тривалості експозиції супроводжується зростанням кількості та розширенням температурних метастабільних ділянок. На відповідних температурних залежностях

оптичного двоприменезаломлення (рис. 8) та діелектричної проникливості (рис. 9) також спостерігається збільшення кількості та розширення метастабільних ділянок.

Отже, можна зробити такі висновки:

1. Малорухомі дефекти, взаємодіючи з модульованою структурою, зумовлюють появу метастабільних ділянок, тобто температурних ділянок, у яких хвильовий вектор несумірності закріплюється на сумірному значенні вищого порядку.
2. Наявність метастабільних ділянок спричиняє аномальну поведінку оптичного двоприменезаломлення. Причому температурному інтервалові локалізації вектора несумірності відповідає ділянка практично постійного значення двоприменезаломлення, а температурному інтервалові різкої її зміни — інтервал

відповідної зміни вектора несумірності.

3. Перехід від одного метастабільного стану до іншого є неперервним.

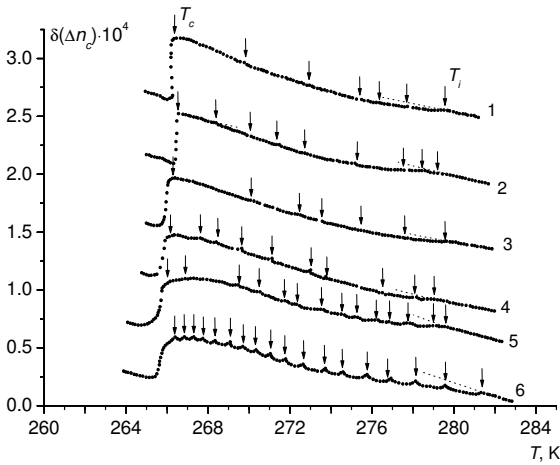


Рис. 8. Виміряні в режимі нагрівання ( $dT/dt = 10$  К/год) температурні залежності зміни двозаломлення для с-зрізу кристалів  $[N(CH_3)_4]_2FeCl_4$ , опромінених протягом часу: 0(1); 0.5 год (2); 1.33 год (3); 2 год (5); 3 год (6).

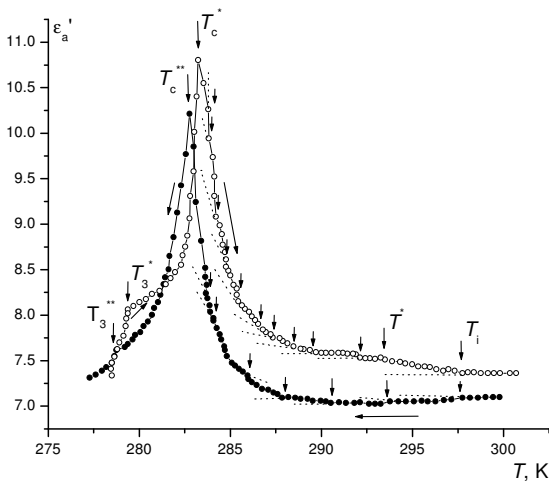


Рис. 9. Температурні залежності дійсної частини діелектричної проникливості  $\epsilon'_a$ , а для режимів нагрівання (○) й охолодження (●) кристалів  $[N(CH_3)_4]_2ZnCl_4$ , опромінених протягом 3 годин рентгенівськими променями.  $dT/dt = 10$  К/год.

## II. ШВИДКІСТЬ РУХУ МОДУЛЬОВАНОЇ СТРУКТУРИ ДОРІВНЮЄ ШВИДКОСТІ РУХУ ДЕФЕКТІВ І ДОМШОК У КРИСТАЛІ

### А. Природа ефекту в'язкої взаємодії

Взаємодія несумірної структури з дефектами особливо яскраво проявляється, коли швидкість руху солітонів стає близькою до швидкості дифузії дефектів

у кристалах. У цьому режимі силошвидкісна залежність набуває гістерезисного характеру [45]. При таких умовах виникає ефект “в'язкої” взаємодії. Він пов'язаний з утворенням надлишкової концентрації дефектів навколо солітона і її впливом на рух солітонів.

Тобто в умовах в'язкої взаємодії модульованої структури з дефектами в кристалі утворюється хвиля просторового розподілу густини дефектів, що спричиняє розширення сумірних-метастабільних та перехідних (температурний інтервал переходу від одного метастабільного стану до другого — сусіднього) ділянок. Тому зі зменшенням швидкості зміни температури на температурних залежностях оптичного двоприменезаломлення спостерігається аномальна зміна оптичного двоприменезаломлення — спочатку у вигляді “сходинок”, а з подальшим зменшенням — у вигляді “виплесків” (рис. 10) [46]. Перехід від сходинок до виплесків (рис. 10) [46]. Перехід від сходинок до виплесків зумовлений зростанням надлишкової концентрації рухомих дефектів біля солітона з одного боку щодо іншого.

Появу пікоподібної аномальної поведінки температурної залежності  $\delta(\Delta n)$  у НС фазі кристалів  $[N(CH_3)_4]_2MeCl_4$  ( $Me = Cu, Zn, Fe$ ) при “в'язкій” взаємодії відзначали в низці праць [47, 49]. Розгляньмо докладно залежність  $\delta(\Delta n) = f(T)$ , отриману за умов “в'язкої” взаємодії для кристала  $[N(CH_3)_4]_2FeCl_4$  (рис. 11). Вона характеризується лінійним наростанням  $\delta(\Delta n)$  із температурою до максимального значення, а потім нелінійним спадом цієї величини. Тобто за умов “в'язкої” взаємодії аномальна залежність  $\delta(\Delta n) = f(T)$  описується гілками: першою — лінійне зростання  $\delta(\Delta n)$  із температурою, другою — спад величини  $\delta(\Delta n)$  за законом  $\delta(\Delta n) \sim 1/T$ .

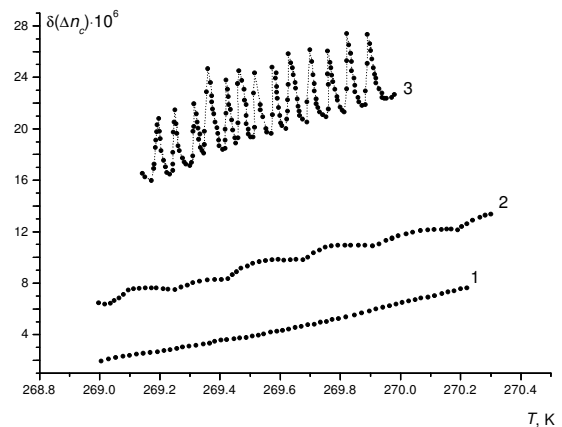


Рис. 10. Температурні залежності для кристала  $[N(CH_3)_4]_2FeCl_4$  при швидкості зміни температури  $dT/dt = 1500$  (1), 300 (2), 60 мК/год (3).

У першому наближенні, як це легко зауважити з [24],  $\delta(\Delta n)$  є пропорційне до швидкості зміни солітонної структури. Тоді залежність  $\delta(\Delta n) \sim f(T)$  можна

подати в координатах  $v_c$  і  $T$  як функцію  $v_c \sim f(T)$  чи в координатах  $v_c$  і  $F$  як функцію  $v_c \sim f(F)$ , де  $F$  — узагальнена сила, що діє на солітон у відносних одиницях (рис. 11).

Для пояснення отриманих результатів скористай-

мося даними теоретичної праці [50], згідно з якою, внаслідок взаємодії домішок і DC's (discommensurations — розсумірності, або солітони), останні відчувають гальмівну силу  $F_{\text{drag}}$ , що виникає з профілю домішкової концентрації поблизу них.

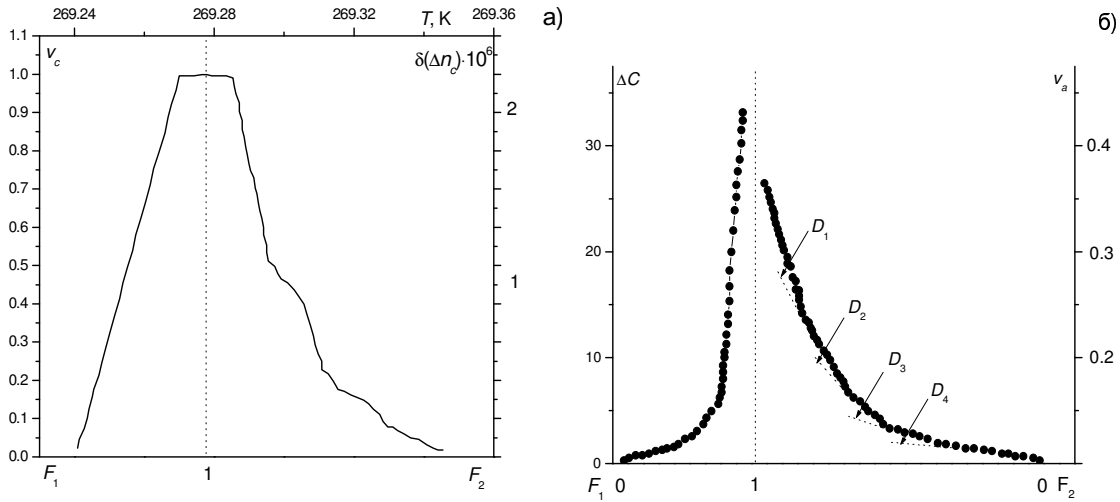


Рис. 11. Температурна залежність двозаломлення  $\delta(\Delta n)$  і розрахована сило-швидкісна залежність  $v_c \sim f(F)$  (а) та профіль надлишкової концентрації  $\Delta C$  дефектів навколо солітона й відповідна залежність  $v_a \sim f(F)$  (б) у відносних одиницях для кристала  $[N(CH_3)_4]_2FeCl_4$ .

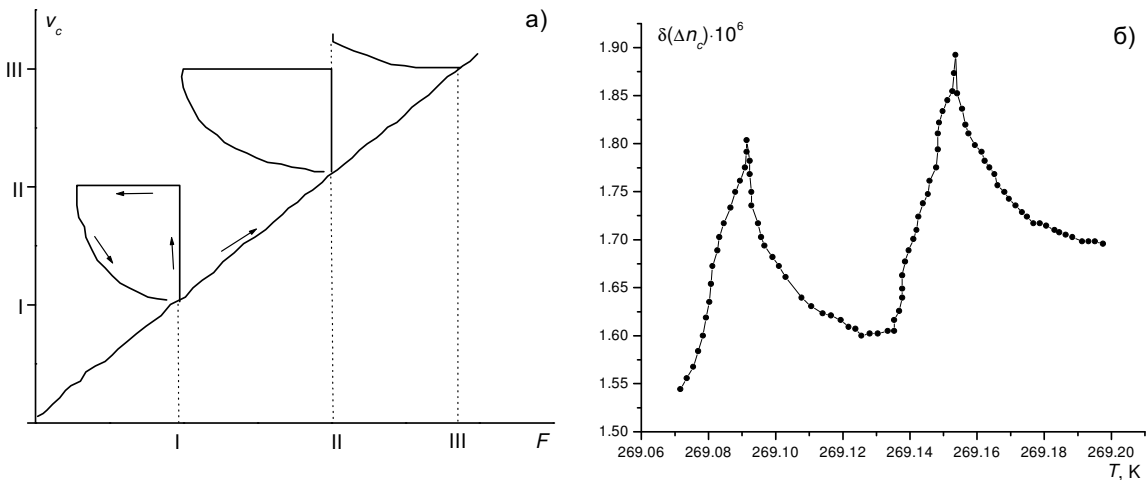


Рис. 12. Температурна залежність  $v_c \sim f(F)$  (а), експериментально визначена з двозаломлення  $\delta(\Delta n)$  при швидкості зміни температури  $dT/dt = 60$  мК/год. Справа наведено саму залежність  $\delta(\Delta n) \sim f(T)$  при  $dT/dt = 60$  мК/год (б) для кристала  $[N(CH_3)_4]_2FeCl_4$ .

На початковому етапі, коли  $F_{\text{drag}} \sim v_c$ , а значить  $\delta(\Delta n) \sim T$ , дефекти змушують солітон рухатись по зразку. Коли ж залежність  $\delta(\Delta n) \sim f(T)$  досягає максимуму, а швидкість набуває якогось критичного значення, то відбувається процес нуклеації чи анігіляції солітонів. Це зумовлює різке зростання швидкості руху солітонів з наступним зменшенням її за

законом  $v_c \sim 1/F$ , що й спостерігається на експерименті (рис. 15). Таким чином, навколо солітона існує надлишкова концентрація домішок.

На основі простих виразів для потенціалу взаємодії між солітонами й дефектами в модульованій моделі синус-Гордона у праці [50] отримано розподіл концентрації дефектів поблизу рухомих несумірностей. Він

указує на надлишкову концентрацію дефектів і домішок поблизу солітона, взятого вздовж руху солітонної стінки. Для побудови кривої надлишкової концентрації  $\Delta C$  навколо солітона скористаємось виразом для  $\Delta C$  [50]:

$$\Delta C = \frac{F_{\text{drag}}}{\rho^* k T}, \quad (3)$$

де

$$\rho^* = \frac{v_c}{v_d}.$$

Таку залежність наведено на рис. 11 для процесу нагрівання. Згідно з рис. 11 задній профіль надлишкової концентрації  $\Delta C$  дещо переважає передній, що й зумовлює появу букуючої сили з боку дефектів. Це добре узгоджується з даними теоретичної праці [50]. Отже, в кристалі  $[\text{N}(\text{CH}_3)_4]_2\text{FeCl}_4$  при швидкості зміни температури ( $dT/dt \sim v_c$ ) = 60 мК/год існує гістерезисна поведінка силошвидкісної залежності. Таким чином, експериментально підтверджено, що за умов “в’язкої” взаємодії в цьому кристалі існують дві гілки силошвидкісної залежності, і вони мало впливають одна на одну. Нижня гілка є домішково домінуючою ( $\delta(\Delta n) \sim T$ ), а верхня відповідає домішково вільному рухові солітона ( $\delta(\Delta n) \sim 1/T$ ). Тепер стає зрозумілим, чому в нашому випадку аномалії  $\delta(\Delta n)$  за умов

“в’язкої” взаємодії мають пікоподібний характер, а в праці [47] сходинчастий.

Це можна пояснити таким фактом. У кристалах кварцу, навіть за умови низької швидкості зміни температури  $dT/dt = 15$  мК/год, не досягається гістерезисний характер силошвидкісної залежності, оскільки гістерезисного характеру залежності  $v_c \sim f(F)$  проявляється за умови, коли  $v_c/v_d \leq 1$ . Для того щоб отримати гістерезисний характер силошвидкісної залежності в кристалі кварцу, необхідно ще зменшити швидкість руху соліона. Беручи до уваги отримані результати для кристала  $[\text{N}(\text{CH}_3)_4]_2\text{FeCl}_4$ , для кварцу її потрібно зменшити принаймні в 4 рази.

Ураховуючи, що  $\delta(\Delta n) \sim v_c$  і  $T \sim F$ , як буде показано нижче, маємо для кристала  $[\text{N}(\text{CH}_3)_4]_2\text{FeCl}_4$  відповідно до залежності  $\delta(\Delta n) \sim f(T)$  (рис. 11), силошвидкісну залежність такого вигляду, як це зображено на рис. 12.

Згідно з рис. 11 пікоподібній залежності  $\delta(\Delta n) \sim f(T)$  відповідає гістерезисний характер силошвидкісної залежності. Тобто зі зміною температури відбувається перехід від одного циклу  $v_c(F)$  до іншого, оскільки один цикл відрізняється від іншого силою взаємодії DC’s із домішками. За умови негістерезисного характеру силошвидкісної залежності спостерігається сходинчаста залежність  $\delta(\Delta n) \sim f(T)$  (рис. 13,а), а залежність  $v_c \sim f(F)$  набуває вигляду, показаного на рис. 13,б.

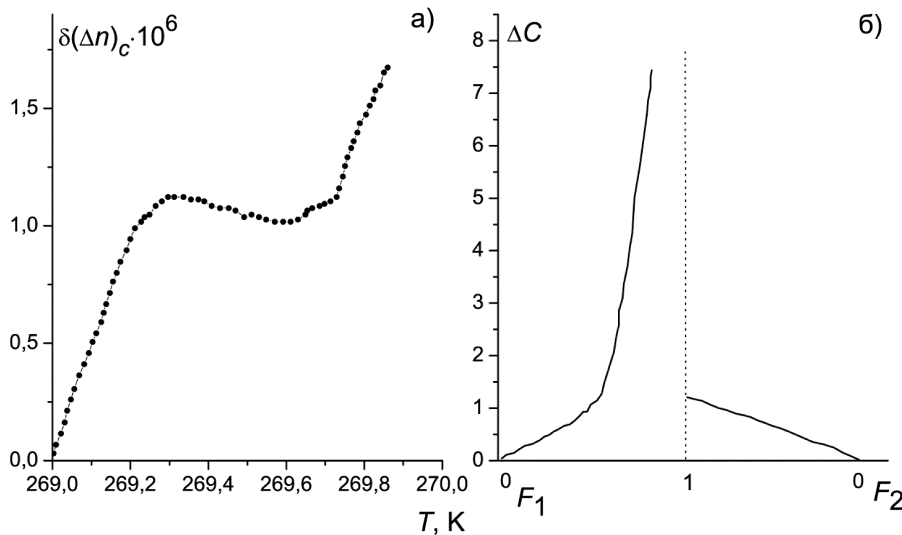


Рис. 13. Залежності  $\delta(\Delta n) = f(T)$  (а) і  $\Delta C \sim f(F)$  (б) при швидкості зміни температури  $dT/dt = 180$  мК/год для кристала  $[\text{N}(\text{CH}_3)_4]_2\text{FeCl}_4$ .

Згідно з працею [50], зі зменшенням швидкості руху DC’s чи збільшенням сили взаємодії з домішками повинна зростати величина надлишкової концентрації домішок біля DC’s. Це закономірно, оскільки при наступному зменшенні величини  $v_c$  у взаємодію включається більша кількість домішок, які відрізняються коефіцієнтами дифузії. Так, на рис. 14 наведено температурну залежність  $\delta(\Delta n)$  для кристала

$[\text{N}(\text{CH}_3)_4]_2\text{FeCl}_4$  при  $dT/dt = 36$  мК/год. З рис. 14 випливає, що наступне зменшення швидкості руху солітона приводить до зміни форми аномалії  $\delta(\Delta n)$  від пікоподібної до “S”-подібної. Відповідно до виразу (3), на рис. 13 показано профіль надлишкової концентрації домішок навколо солітона. Такий профіль, згідно з роботою [50], можна отримати, якщо збільшити силу взаємодії чи зменшити швидкість руху солітона.



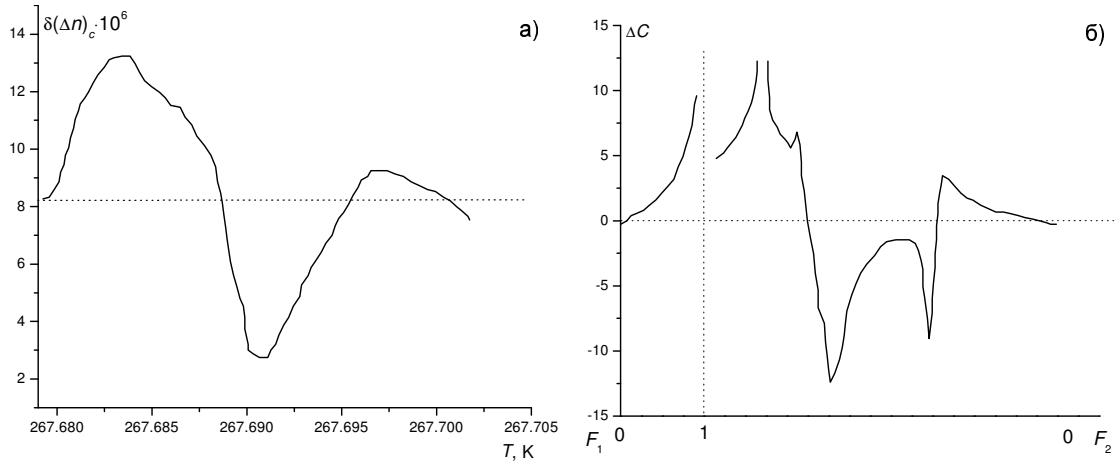


Рис. 14. Залежності  $\delta(\Delta n) = f(T)$  (а) і  $\Delta C = f(F)$  (б) при швидкості зміни температури  $dT/dt = 60$  мК/год для кристала  $[\text{N}(\text{CH}_3)_4]_2\text{FeCl}_4$ .

Постає питання, чи у взаємодії беруть участь домішки з одним значенням коефіцієнта дифузії ( $D$ ) чи з різними значеннями  $D$ . Узавши до уваги залежність  $\delta(\Delta n) \sim f(T)$ , зображену на рис. 11, можна стверджувати, що у взаємодії беруть участь, принаймні, домішки з трьома коефіцієнтами дифузії. Оскільки на правому краї  $\delta(\Delta n) \sim f(T)$ , можна виділити щонайменше три лінійні ділянки в різних температурних інтервалах, а отже, і в часових, з огляду на еквівалентність при релаксації за часом і температурою.

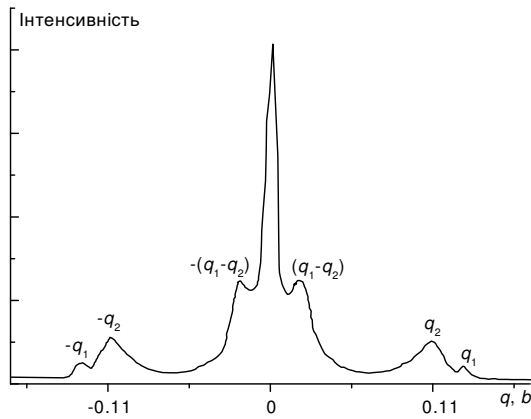


Рис. 15. Дифрактограма суперпозиційного модульованого стану після індукування двох хвиль густини дефектів.

Для визначення коефіцієнтів дифузії домішок скористаймося виразом для  $\delta(\Delta n)$ , який, згідно з роботою [24], має вигляд:

$$\delta(\Delta n_c)_{(T=\text{const})} = R_{ij}^0 P_s^2 + p_{ijk}^0 u_k + \omega_{ij}^0 \rho^2 + \nu_{ij}^0 \rho^2 \frac{\partial \varphi}{\partial z},$$

де перший і другий члени описують відповідно внески спонтанного квадратичного електрооптичного й

лінійного пружнооптичного ефектів, третій і четвертий доданок відповідають внескам параметра порядку та його просторової похідної, а відповідні коефіцієнти є ефективними.

Оскільки аномальна поведінка  $\delta(\Delta n)$  при ефекті “в’язкої” взаємодії пов’язана зі зміною фази параметра порядку [24], то розгляньмо зміну  $\delta(\Delta n_c)$  з температурою:

$$\delta(\Delta n) \sim \partial(\Delta n)_c |_{\Delta T} \sim \partial q |_{\Delta T} \approx \frac{\partial q}{\partial t} \Delta t$$

у плоскохвильовому наближенні  $\varphi = k_0 z$ . Оскільки в першому наближенні  $\frac{\partial q}{\partial t} = v$  — швидкість зміни фази параметра порядку, а  $\frac{\partial T}{\partial t} = \nu$  — швидкість зміни температури, то:

$$v \sim \frac{\delta(\Delta n_c)}{\Delta T} \cdot \nu. \quad (4)$$

На рис. 11 показано залежність швидкості руху солітона ( $v$ ) від сумарної сили  $F$ , отриману з (4). Ця залежність характеризується принаймні трьома лінійними ділянками. Вони повинні задовольняти умову

$$v_c = v_{c0} - \frac{C_0 \sigma^2 k T D}{F_{\text{drag}}},$$

де  $C_0$  — рівноважна концентрація домішок,  $\sigma = \frac{E_0}{kT}$  — “сила” домішки.

Отже, продовжуючи цю залежність до перетину з віссю ординат і беручи до уваги умову появи “в’язкої” взаємодії ( $v_c a / D \ll 1$ , де  $a$  — параметр ґратки) [50], можна оцінити значення коефіцієнта дифузії  $D$ . Використовуючи наведену залежність  $v = f(F)$  на рис. 14, можна стверджувати, що найменше в кристалі  $[\text{N}(\text{CH}_3)_4]_2\text{FeCl}_4$  існують домішки хоча б з чотирма різними коефіцієнтами дифузії:

$$D_1 = 0.12 \cdot 10^{-16} \text{ м}^2/\text{с}; D_2 = 0.07 \cdot 10^{-16} \text{ м}^2/\text{с}; \\ D_3 = 0.04 \cdot 10^{-16} \text{ м}^2/\text{с}; D_4 = 0.025 \cdot 10^{-16} \text{ м}^2/\text{с}.$$

Для перевірки отриманих значень  $D$  скористаємось даними роботи [24] стосовно дослідження залежності  $\delta(\Delta n) \sim f(t)$ . Оскільки в цьому випадку  $\delta(\Delta n_c) \sim \partial q/\partial t$ , то одержимо, що  $D \sim 10^{-16}$ . Отже, за умов “в’язкої” взаємодії НС структури сила  $F_{\text{drag}}$ , яка діє з боку надлишкової концентрації дефектів біля солітона, змушує його рухатися по зразку. Коли сила  $F_{\text{drag}}$  досягає свого критичного значення, тобто енергія взаємодії дорівнює енергії зародження чи анігіляції солітонів, відбувається зміна солітонної структури, що приводить до зростання швидкості руху солітона по зразку. Але внаслідок взаємодії солітона з дефектами (на цьому етапі дефекти гальмують рух солітонів), його швидкість зменшується за законом  $v \sim 1/F_{\text{drag}}$ . Це зменшення  $v_c$  продовжується до того моменту, коли навколо солітона починає утворюватися надлишкова концентрація дефектів, оскільки  $v_c \cdot a \approx D$  ( $a$  — параметр ґратки), і цикл повторюється знову.

Таким чином, природа ефекту “в’язкої” взаємодії пов’язана з утворенням надлишковою концентрацією дефектів навколо солітона і впливом цієї надлишкової концентрації на рух солітонів. На основі наведених результатів можна зробити такі висновки:

1. Установлено, що коли швидкість дифузії рухомих дефектів є близькою до швидкості руху солітонів структури, то зростає величина надлишкової концентрації домішок біля DC’s.
2. Показано, що природа ефекту “в’язкої” взаємодії пов’язана з утворенням надлишкової концентрації дефектів навколо солітона і її впливом на рух солітонів.
3. У метастабільному стані за рахунок тривалого часу локалізації хвильового вектора відбувається формування хвилі густини дефектів.

### В. Суперпозиція хвиль модуляції

Відзначимо, що температурним відпалюванням у різних температурних точках усередині несумірної фази можна індукувати в кристалі складні модуляції, які нараховують декілька стабілізаційних хвиль. Сумарна модуляція структури і в цьому випадку здійснюється через суперпозицію таких хвиль. Як приклад на рис. 19 показано дифрактограму, на якій зафіксовано суперпозицію двох стабілізаційних хвиль. Видно, що на рівні зі стабілізаційними рефлексамі, які відповідають хвильовим векторам  $q_1$  і  $q_2$ , поблизу структурного рефлексу утворились додаткові піки, які характеризуються хвильовим вектором  $q = \pm(q_1 - q_2)$ .

Отже, у несумірній фазі в полі модульованої структури формується хвиля просторового розподілу густини дефектів. Коли період хвилі густини дефектів збігається з періодом модульованої структури, то їхня взаємодія проявляється в розширенні температурної ділянки існування метастабільного стану. Коли періоди цих двох хвиль модуляції не збігаються, але є

близькими, то внаслідок їх суперпозиції утворюється хвиля модуляції з  $q = (q_1 - q_2)$ , яка зумовлює аномальну поведінку оптичного двопрорезаломлення [51]. Тобто в перехідній ділянці проходить суперпозиція двох хвиль модуляції, які відповідають двом близьким метастабільним станам (сумірним фазам), а отже в цій ділянці співіснують дві фази. Але феноменологічний опис послідовності фазових переходів у кристалах, які мають несумірну фазу, не допускає такого співіснування. Тому розгляньмо ситуацію, коли в перехідній ділянці існує хвиля густини дефектів, яка відтворює попередню періодичність, і хвиля модуляції, яка відповідає новому метастабільному станові. Взаємодія цих двох хвиль модуляції зумовлює появу хвилі модуляції з різницею значенням хвильового вектора  $q = q_1 - q_2$ , яка, згідно з працею [51], і викликає появу аномальної поведінки оптичного двопрорезаломлення. Беручи до уваги результати праці [52], можна припустити, що вплив дефектів на модульовану структуру можна замінити дією напруженості електричного поля на модульовану структуру. Для пояснення отриманих результатів запишімо густину вільної енергії у формі:

$$f(z) = f_0 + \frac{\alpha}{2}\rho^2 + \frac{\beta_1}{4}\rho^4 - \alpha_1\rho^{2l}\cos 2l\varphi - g\rho^2\frac{\partial\varphi}{\partial z} \\ + \frac{h\rho^2}{2}\left(\frac{\partial\varphi}{\partial z}\right)^2 + \frac{h}{2}\left(\frac{\partial\rho}{\partial z}\right)^2 + \alpha_1E_1\rho^l\cos l\varphi - \frac{E_1^2}{2\theta_1} \quad (5)$$

яка включає інваріант Лівшиця  $\frac{h\rho^2}{2}\left(\frac{\partial\varphi}{\partial z}\right)^2 + \frac{h}{2}\left(\frac{\partial\rho}{\partial z}\right)^2$  та інваріант  $\alpha_1E_1\rho^l\cos l\varphi$ , що описує вплив напруженості електричного поля на модульовану структуру. Тобто в цьому випадку вплив напруженості електричного поля можна розглядати як вплив стаціонарних-нерухомих дефектів на модульовану структуру. Як бачимо з виразу (5), густина вільної енергії при наявності стаціонарних дефектів зростає. На експерименті збільшення концентрації стаціонарних дефектів (дефектів, утворених унаслідок впливу рентгенівського випромінювання [53]) приводить до розширення метастабільних ділянок. Для пояснення отриманих результатів розгляньмо феноменологічний опис впливу напруженості електричного поля на несумірну структуру.

Розв’язуючи систему рівнянь Ейлера

$$\begin{cases} \partial f(z)/\partial\rho - \partial[\partial f(z)/\partial(\partial\rho/\partial z)]/\partial z = 0 \\ \partial f(z)/\partial\varphi - \partial[\partial f(z)/\partial(\partial\varphi/\partial z)]/\partial z = 0 \end{cases}$$

і беручи до уваги, що просторові зміни амплітуди параметра порядку є незначними і можна покласти  $\rho = \text{const}$ , отримаємо:

$$\begin{cases} \alpha\rho + \beta_1\rho^3 - 2l\alpha'_l\rho^{2l-1}\cos 2l\varphi - 2g\rho\frac{\partial\varphi}{\partial z} + h\rho\left(\frac{\partial\varphi}{\partial z}\right)^2 + a_1E_1l\rho^{l-1}\cos l\varphi - h\frac{\partial^2\rho}{\partial z^2} = 0 \\ \alpha'_l\rho^{2l}2l\sin 2l\varphi - a_1E_1\rho^l\sin l\varphi - h\rho^2\frac{\partial^2\varphi}{\partial z^2} = 0. \end{cases}$$

За умови сталої амплітуди параметра порядку рівняння мінімізації потенціалу (5) стає рівнянням математичного маятника:

$$\frac{\partial^2\varphi}{\partial z^2} = \frac{\alpha'_l\rho^{2l}}{h\rho^2} \cdot 2l\sin 2l\varphi - \frac{\rho^l a_1 E_1 l \sin l\varphi}{h\rho^2} = \frac{2\alpha'_l\rho^{2l-2} \cdot l \sin 2l\varphi}{h} - \frac{a_1 E_1 l \rho^{l-2}}{h} \sin l\varphi.$$

Звідси залежність фази від координати  $z$  має вигляд :

$$\frac{1}{2} \left( \frac{d\varphi}{dz} \right)^2 - \frac{\alpha'_l\rho^{2l-2}}{2\gamma} \cos 2l\varphi + \frac{\alpha_l}{\gamma} E\rho^l \cos l\varphi = \Xi,$$

де  $\Xi$  — постійна інтегрування,  $\gamma = h\rho^2$ , відтак

$$\frac{d\varphi}{dz} = \left[ \Xi + \frac{\alpha'_l\rho^{2l-2}}{\gamma} \cos 2l\varphi - \frac{2\alpha_l E\rho^l}{\gamma} \cos l\varphi \right]^{\frac{1}{2}}. \quad (6)$$

Отже, згідно з виразом (6), напруженість стаціонарного електричного поля змінює просторовий розподіл фази параметра порядку так що під впливом поля відбувається локалізація вектора несумірності на сумірних значеннях вищого порядку, а також розширення температурних ділянок їх існування.

Коли ж відбувається взаємодія рухомих дефектів із несумірною структурою, то утворюється хвиля густини дефектів. Тому розгляньмо випадок, коли напруженість електричного поля є просторово промодульованою з періодом, рівним періодові модульованої структури, тобто  $E_1 = bE_0 \cos l_1\varphi$ . За цієї умови густину вільної енергії кристала запишемо так:

$$\begin{aligned} f(z) = & f_0 + \frac{\alpha}{2}\rho^2 + \frac{\beta_1\rho^4}{4} + \frac{1}{2}a_1bE_0\rho^l \\ & + \left( \frac{1}{2}a_1bE_0\rho^l - \alpha'_l\rho^{2l} \right) \cos 2l\varphi - g\rho^2\frac{\partial\varphi}{\partial z} \\ & + \frac{h}{2}\rho^2\left(\frac{\partial\varphi}{\partial z}\right)^2 + \frac{h}{2}\left(\frac{\partial\rho}{\partial z}\right)^2 - \frac{E_1^2}{2v_1}, \end{aligned}$$

а просторовий розподіл фази параметра порядку набере вигляду:

$$\frac{\partial\varphi}{\partial z} = \left( C - \frac{(\alpha'_l\rho^{2l-2} - a_1bE_0\rho^{l-2})}{h} \cos 2l\varphi \right)^{\frac{1}{2}}. \quad (7)$$

При збігові періодів хвиль модуляції зростає густин

на вільної енергії кристала, а отже розширюється температурна ділянка існування метастабільного стану з цим періодом модуляції. Щодо просторового розподілу фази параметра порядку, то отримані результати (вираз (7)) аналогічні до тих, які одержані під впливом стаціонарного електричного поля (вираз (6)).

В умовах в'язкої взаємодії періоди просторового розподілу густини дефектів і модульованої структури не збігаються, але є близькими  $E_1 = bE_0 \cos l_1\varphi_1$ ,  $l_1 \neq l$ ,  $\varphi_1 \neq \varphi$ . У цьому випадку густину вільної енергії можна записати так:

$$\begin{aligned} f(z) = & f_0 + \frac{\alpha}{2}\rho^2 + \frac{\beta_1\rho^4}{4} - \alpha'_l\rho^{2l} \cos 2l\varphi - g\rho^2 \left( \frac{\partial\varphi}{\partial z} \right)^2 \\ & + \frac{h}{2} \left( \frac{\partial\rho}{\partial z} \right)^2 + \frac{1}{2}a_1bE_0\rho^l \cos(l\varphi - l_1\varphi_1) \\ & + \frac{1}{2}a_1bE_0\rho^l \cos(l\varphi + l_1\varphi_1). \end{aligned} \quad (8)$$

Розв'язок рівняння мінімізації цього потенціалу отримуємо у вигляді:

$$\begin{aligned} \frac{\partial\varphi}{\partial z} = & \left( C + \frac{a_1bE_0\rho^{l-2} \cos(l\varphi - l_1\varphi_1)}{h} \right. \\ & \left. + \frac{a_1bE_0\rho^{l-2} \cos(l\varphi + l_1\varphi_1)}{h} - \frac{2\alpha'_l\rho^{2l-2} \cos 2l\varphi}{h} \right)^{\frac{1}{2}}. \end{aligned} \quad (9)$$

Як бачимо з виразу (8), густина вільної енергії кристала зростає за рахунок члена  $\frac{1}{2}a_1bE_0\rho^l \cos(l\varphi - l_1\varphi_1)$ , оскільки величина косинуса є близькою до одиниці. Що стосується виразу (9), то в ньому домінуватиме аналогічний член. Отже, в перехідній ділянці взаємодіють дві хвилі модуляції, в результаті їх суперпозиції утворюється хвиля з вектором, рівним різниці хвильових векторів цих модуляцій. Це свідчить про новий стан модульованої структури, який характеризується суперпозицією декількох хвиль модуляції вздовж одного кристалографічного напрямку. Про наявність такого стану модульованої структури зазначалось у працях [54,55]. Як показує опис оптич-

ного двопронезаломлення [56], приріст оптичного двопронезаломлення в умовах в'язкої взаємодії в напрямках, перпендикулярних до напрямку модуляції, є пропорційним до просторової зміни фази параметра порядку ( $\delta(\Delta n) \sim \frac{\partial \varphi}{\partial z}$ ). Тобто

$$\delta(\Delta n) \sim \left( C + \frac{a_1 b E_0 \rho^{l-2} \cos(l\varphi - l_1 \varphi_1)}{h} \right)^{\frac{1}{2}}, \quad (10)$$

оскільки останніми доданками в (9) можна знехтувати через їхній незначний внесок. Як приклад, на рис. 16 наведено приріст оптичного двопронезаломлення в умовах в'язкої взаємодії та теоретично розраховано залежність  $\delta(\Delta n_b)$  згідно з виразом (10). Отримані залежності добре корелюють між собою.

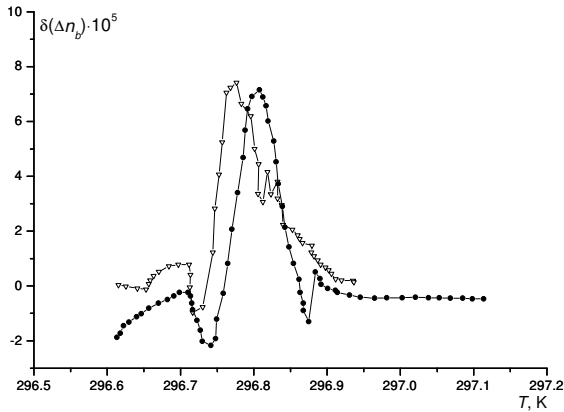


Рис. 16. Температурний приріст оптичного двопронезаломлення в перехідній ділянці для кристала  $[N(CH_3)_4]_2CuCl_4$ .  $\nabla$  — експериментальна крива,  $\bullet$  — теоретична крива.

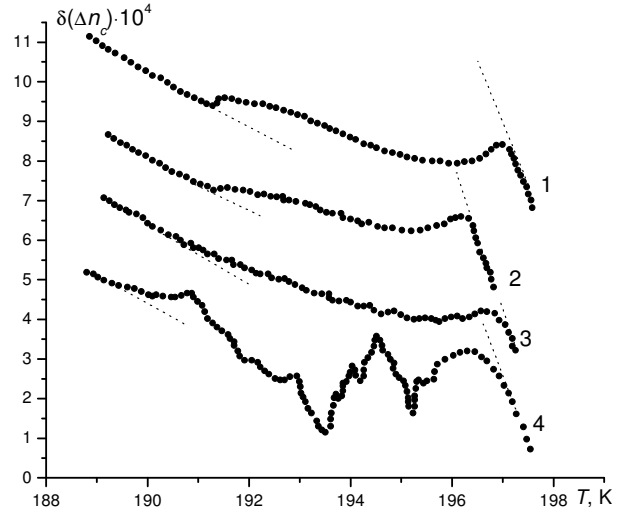


Рис. 17. Температурні залежності зміни двопронезаломлення кристалів  $[N(CH_3)_4]_2CuCl_4$ , опроміненних рентгенівськими променями вздовж осі модуляції ( $d_c = 5$  мм) протягом часу  $t = 0$  (1); 1.75 год (2); 3.5 год (3); 5.5 год (4). Швидкість зміни температури в режимі нагрівання  $dT/dt = 16$  К/год.

Отже, в перехідній ділянці взаємодіють дві хвилі модуляції, одна з яких є незмінною і відповідає хвилі густини дефектів. Як результат такої взаємодії утворюється результуюча хвиля модуляції, яка робить основний внесок у появу аномальної поведінки оптичного двопронезаломлення в умовах в'язкої взаємодії.

Складніша картина співіснування просторово-про модульованих станів виникає під впливом градієнтних чинників (рис 17, 18) на модульовану структуру.

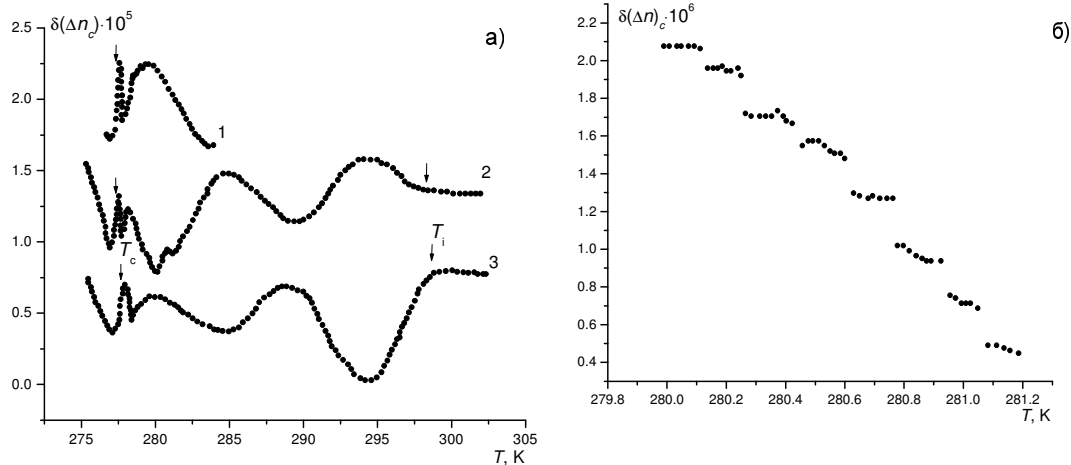


Рис. 18. Температурні залежності  $\delta(\Delta n_c)$  кристалів  $[N(CH_3)_4]_2ZnCl_4$ , опроміненних уздовж осі  $c$  протягом 6 годин для різних швидкостей зміни температури:  $dT/dt = 2$  К/год (1); 16 К/год (2); 84 К/год (3) в режимі нагрівання (а), ділянка кривої 1 у збільшеному масштабі (б).

**III. ШВИДКІСТЬ РУХУ МОДУЛЬОВАНОЇ СТРУКТУРИ Є НАБАГАТО МЕНШОЮ ЗА ШВИДКІСТЬ РУХУ ДЕФЕКТІВ І ДОМІШОК У КРИСТАЛІ**

При наявності рухомих дефектів у полі несумірної структури відбувається їх упорядкування так, що навколо солітона утворюється надлишкова їх концентрація, зумовлюючи тим самим виникнення хвилі густини дефектів. Тобто під час витримування зразка в несумірній фазі при сталій температурі (модульована структура не змінює своєї періодичності) формується хвиля густини дефектів. При повторному проходженні точки стабілізації відбувається взаємодія хвилі густини дефектів із модульованою структурою, приводячи тим самим до утворення ефекту термооптичної пам'яті (рис. 19, 20). Отже, природу цього ефекту слід розглядати як збіг періодів принаймні двох хвиль модуляції, одна з яких є стаціонарною хвилею густини дефектів, на що вказує температурна поведінка оптичного двопроменезаломлення при різних швидкостях зміни температури в умовах існування ефекту термооптичної пам'яті (рис. 19).

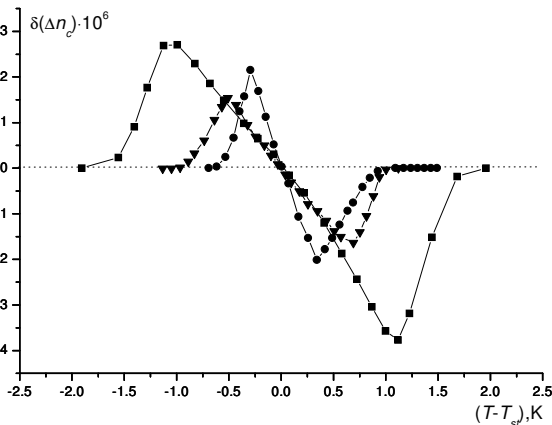


Рис. 19. Аномальна температурна поведінка спонтанного приросту двозаломлення  $\delta(\Delta n_s)$  в температурному інтервалі існування ефекту термооптичної пам'яті для кристалів:  $[\text{N}(\text{CH}_3)_4]_2\text{CuCl}_4$  —  $\diamond$ ,  $[\text{N}(\text{CH}_3)_4]_2\text{FeCl}_4$  —  $\circ$ ,  $[\text{N}(\text{CH}_3)_4]_2\text{CoCl}_4$  —  $\nabla$ .

Ще одним свідченням утворення хвилі просторового розподілу густини дефектів є наявність у метастабільних-сумірних станах подвійних електрооптичних петель гістерезису. Під час отримання таких петель гістерезису в сумірній ділянці несумірної фази утворюється хвиля густини дефектів із хвильовим вектором, який відповідає хвильовому векторові несумірної структури (в цьому випадку хвильовий вектор несумірності приймає сумірне значення вищого порядку). Тобто утворюється стан, у якому співіснують дві просторові хвилі модуляції — стаціонарна хвиля розподілу густини дефектів та хвиля модуляції, хвильовий вектор якої міняється з температурою. В умовах реполяризації доменів відбувається перехід кристала з неоднорідного в однорідний стан зі зник-

ненням солітонної структури. При цьому залишається слід — хвиля просторового розподілу густини дефектів, яка є зародком при зворотному процесі. Таким чином, суперпозиція наявних хвиль модуляції і зумовлює появу аномальної поведінки фізичних величин. Розгляньмо докладніше механізм утворення подвійних електрооптичних петель гістерезису.

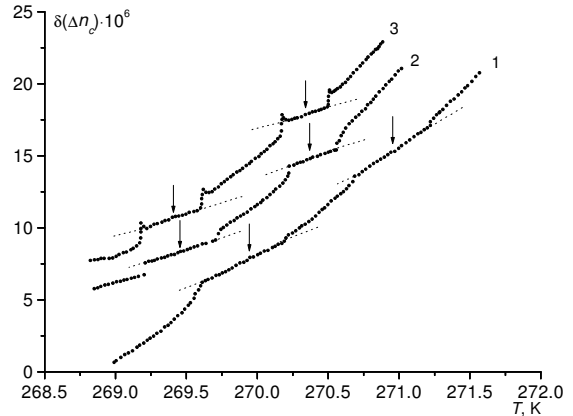


Рис. 20. Температурна залежність  $\delta(\Delta n_c) = f(T)$  для с-зрізу кристала  $[\text{N}(\text{CH}_3)_4]_2\text{FeCl}_4$ , попередньо витриманого протягом 25 год при температурах  $T_{st.1}=269.36$  К;  $T_{st.2}=270.36$  К. Швидкість повторного проходження  $dT/dt = 5.7$  К/год.(1); 2.6 К/год.(2); 1.3 К/год.(3).

Виникнення подвійних петель гістерезису в кристалах помічали й раніше [57, 58]. Так, у кристалах  $[\text{NH}_4]_2\text{BeF}_4$  та  $\text{Rb}_2\text{ZnCl}_4$  в околі  $T_c$  з боку несумірної фази на залежностях  $\epsilon \sim f(E)$  спостерігали подвійні петлі гістерезису. Природа їх існування, згідно з даними праці [59], пояснювалась з допомогою DDW (Defect Density Wave) моделі. Як видно з цієї моделі, ділянки з протилежною поляризацією під впливом поля зникали і при цьому залишали "слід", який і став зародком при зворотному ході. Розглядаючи аналогічні петлі гістерезису в сумірних ділянках несумірної фази кристалів  $[\text{N}(\text{CH}_3)_4]_2\text{MeCl}_4$  ( $\text{Me} = \text{Zn}, \text{Co}, \text{Fe}$ ), слід зауважити, що ці ділянки лежать далеко від фазових переходів. Як приклад, у кристалі BCCD в таких ділянках спостерігали подібні подвійні петлі гістерезису [50]. Їх наявність пов'язана зі співіснуванням сумірної довгоперіодичної фази з несумірною, а під впливом поля зникає лише одна з фаз. Значить, у сумірній сегнетоелектричній довгоперіодичній фазі співіснують дві фази: несумірна й сумірна сегнетоелектрична фази. Отже, при  $E = E_k$  солітони зникають у зразку і при цьому відбувається перехід із неоднорідного стану в однорідний.

Оскільки в околі фазового переходу несумірна-сумірна фаза ( $T_c \div T_c + 8$  К) в кристалі  $[\text{N}(\text{CH}_3)_4]_2\text{ZnCl}_4$  спостерігалась деполаризація солітонної структури під впливом електричного поля [60], то в цьому діапазоні температур в умовах в'язкої взаємодії (при наближенні швидкості зміни періоду модульованої структури до швидкості дифузії рухомих дефектів у зразку [24]) досліджували електрооптичні

петлі гістерезису в температурних інтервалах існування сумірних ділянок несумірної фази.

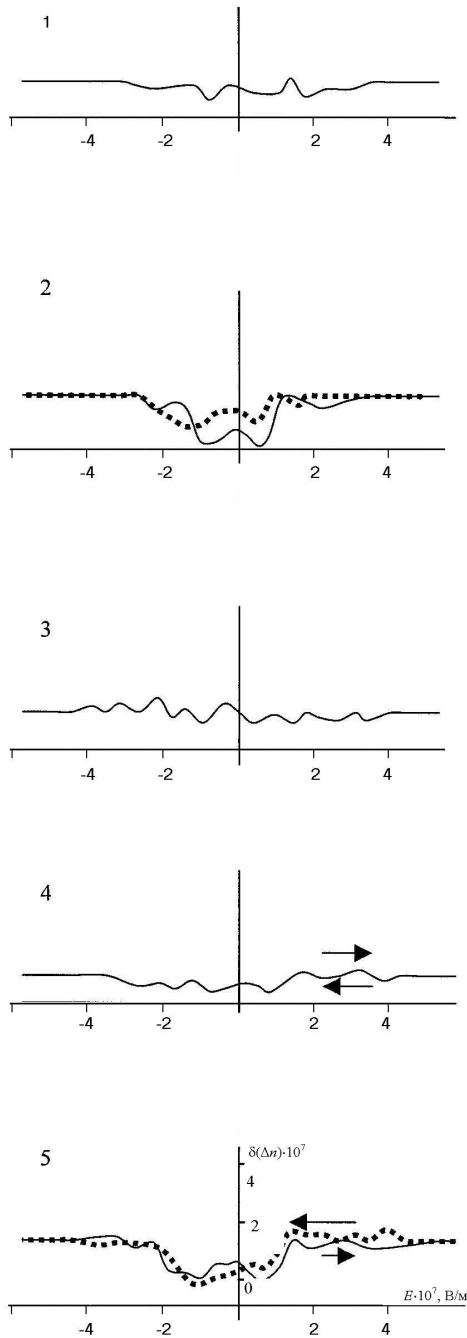


Рис. 21. Електрооптичні петлі гістерезису в координатах  $\delta(\Delta n_a) \sim f(E_a)$  в ділянках існування сумірних — сегнетоелектричних та сегнетоеластичних фазах для кристала  $[\text{N}(\text{CH}_3)_4]_2\text{ZnCl}_4$ .

Результати експерименту наведено на рис. 21. У несумірній фазі кристала  $[\text{N}(\text{CH}_3)_4]_2\text{ZnCl}_4$  в зазначених на рисунках температурних інтервалах спостерігаємо

електрооптичні петлі гістерезису (крива 2 і 5 рис. 21).

Причому простежуємо закономірність послідовності температурних ділянок, у яких відсутні електрооптичні петлі гістерезису, і ділянок, де вони спостерігаються. Тобто серед спостережуваних сумірних фаз існують такі, які мають властивості сегнетоелектричних фаз. У цих фазах змінюється фаза параметра порядку під впливом напруженості електричного поля. Згідно з працею [61], зміну фази параметра порядку можна подати як  $\varphi = \varphi_0 + \varphi_1$ , де

$$\varphi_1 = \frac{d\varphi}{dz} \int \frac{aE_z \rho^l \sin l\varphi_0 + C}{2\gamma \left(\frac{d\varphi_0}{dz}\right)^2} dz,$$

де  $\varphi_0$  не залежить від напруженості електричного поля. В першому наближенні, як це було показано в роботі [62], можна припустити, що  $\varphi_1 \sim b_1 E$ , де  $b_1$  — коефіцієнт пропорційності.

Згідно з рис. 21, криві 2,5, залежність оптичного двопронезаломлення від величини напруженості електричного поля характеризується аномальною поведінкою  $\delta(\Delta n_a)$  від поля. Величина цих аномалій становить  $\sim 1 \div 2 \cdot 10^{-7}$ . У загальному отримана залежність  $\delta(\Delta n_a) \sim f(E)$  (в інтервалі  $-20 \cdot 10^3 \div 20 \cdot 10^3$  В/м) аналогічна до залежностей  $\delta(\Delta n_i) \sim f(\sigma)$  і  $\delta(\Delta n_i) \sim f(T)$  (в умовах в'язкої взаємодії), які, згідно з [62], пояснювались зміною густини солітонів під впливом зовнішніх сил. При малих полях ( $0 < E < 6 \cdot 10^3$  В/м) спостерігаємо подвійні петлі гістерезису з величиною коерцитивного поля  $E_k \approx 2 \cdot 10^3$  В/м. Одержані петлі аналогічні до тих, що були у кристалах  $[\text{N}(\text{CH}_3)_4]_2\text{CoCl}_4$  [63], ВССД [50];  $[\text{NH}_4]_2\text{BeF}_4$  [57]. Отже, при малих значеннях величини напруженості електричного поля бачимо подвійні електрооптичні петлі, зумовлені переполяризацією сегнетоелектричних доменів у сумірних сегнетоелектричних фазах. Для виявлення механізму появи подвійних петель гістерезису запишемо енергію ґратки солітонів у вигляді [64]:

$$\frac{\Phi}{2\gamma\rho^2V} = \left[ \frac{4\sqrt{v}}{\pi} - |k_0| \right] \bar{k} + U(k), \quad (11)$$

де  $v = \frac{\alpha_l' \rho^{2l-2}}{\gamma}$ ,  $U(k)$  — енергія відштовхування солітонів,  $\bar{k}$  — усереднений вектор солітонної структури,  $k_0$  — хвильовий вектор несумірно модульованої структури,  $\gamma = \delta$ .

Згідно з виразом (11), за умови, коли  $|k_0| = k_0^*$ , де

$$k_0^* = \frac{n\rho^{l-1}}{4\pi} \sqrt{\frac{\alpha_l'}{\gamma}} \quad (12)$$

виникатиме фазовий перехід із неоднорідного стану в однорідний.

При умові, коли енергія, яка надана кристалові, дорівнюватиме енергії ґратки солітонів, тобто [63]:

$$\Xi + \frac{\alpha'_l \rho^{2l-2}}{\gamma} - \frac{2a_l E \rho^l}{\gamma} = 0,$$

де  $\cos l(\varphi_0 + bE_1) = \frac{a_l E}{|a_l E|} = 1$ ,  $E_k = E$ ,  $\alpha'_l < 0$ ,  $\Xi$  — стала інтегрування, відбуватиметься переполяризація доменів сумірної сегнетоелектричної фази. Тому

$$E = E_k = \frac{\alpha'_l \rho^{l-2}}{2a_l}.$$

Отже, в нашому випадку вираз (12) можна записати так:

$$k_0^* = \frac{nE_k \rho a_l}{2\pi \sqrt{\alpha'_l \gamma}}.$$

Тобто при малих полях маємо  $k_0^* - |k_0| < 0$ , і системі вигідне існування солітонів. Коли ж цей вираз стає додатним (при  $E = E_k$ ), то солітони зникають. Отже, при  $E = E_k$  солітони в зразку зникають, і при цьому відбувається перехід із неоднорідного стану в однорідний. Таким чином, у сумірній довгоперіодичній фазі:

- 1) співіснують сумірна й несумірна фази;
- 2) взаємодія між такими фазами спричиняє появу подвійних петель гістерезису в координатах  $\delta(\Delta n_i) \sim f(E)$ .

Розгляньмо механізм співіснування сумірної й несумірної фаз. У температурному інтервалі існування сумірної сегнетоелектричної фази в несумірній фазі напруженість електричного поля індукує структурний стан, зумовлений співіснуванням декількох хвиль модуляції в одному кристалографічному напрямку. Якщо різко зростає величина  $\delta(\Delta n)$  (рис. 25, крива 2 і 5), під впливом напруженості електричного поля зникають ділянки з протилежною поляризацією. При цьому залишається так званий “слід”, який і є зародком при зворотному ході. Постає питання про механізм утворення цього сліду, що стає зародком для відновлення модульованої структури з періодом, рівним періодові зниклої модуляції під час зменшення величини напруженості електричного поля.

Для пояснення отриманих результатів зазначимо, що під час тренування зразка з несумірною фазою спостерігаємо зменшення величини температурного гістерезису фазового переходу при  $T_c$ , а також температурної ділянки існування глобального гістерезису [3]. Установлено, що, проходячи несумірну фазу, несумірна структура здійснює просторовий розподіл дефектів так, що він у першому наближенні відтворює періодичність несумірної структури. При виході з несумірної фази ( $T < T_c$ ) це збурення просторового розподілу дефектів залишається, і такий розподіл

розглядають як зародок несумірної структури при новому проходженні фазового переходу. Це підтверджується тим, що витримування зразка у вихідній фазі приводить до рівномірного розподілу густини дефектів по зразку, це викликає зменшення температурного гістерезису фазового переходу при  $T_c$  і збільшення температурної ділянки існування глобального гістерезису.

Оскільки в нашому випадку в сумірній ділянці несумірної фази період модуляції практично не змінюється, то відбувається перерозподіл густини дефектів. Тобто формується хвиля густини дефектів з періодом, кратним періодові несумірної модуляції (хвильовий вектор несумірності приймає сумірне значення). Оскільки тривалість перебування в ділянці існування сумірної сегнетоелектричної фази незначна ( $t < 0.5$  год згідно з умовами експерименту), то в нашому випадку не повинна б утворюватись хвиля густини дефектів. Але в електричному полі зростає швидкість релаксаційних процесів [3], що уможливує утворення останньої. Для підтвердження цього проведено дослідження електрооптичних петель гістерезису при різній тривалості витримки зразка в температурній ділянці існування сегнетоелектричної фази. Отримані результати наведено на рис. 22. Згідно з рисунком, при збільшенні тривалості витримки в температурній ділянці існування сегнетоелектричної фази зростає не тільки величина аномальної зміни  $\delta(\Delta n_a)$  в ділянці переходу системи з неоднорідного стану в однорідний, але й величина коерцитивного поля. Останнє свідчить про більшу кількість дефектів, які беруть участь у формуванні хвилі густини дефектів зі тривалості витримки зразка в сумірній ділянці. Аналогічні результати отримано при багатократному змінанні електрооптичних петель гістерезису при постійній температурі в цій ділянці. Витримування зразка при постійній температурі вище від величини коерцитивного поля спричиняло зменшення значення величини коерцитивного поля та  $\delta(\Delta n_a)$  при повторному проходженні.

Таким чином, при перебуванні в температурній ділянці сумірної сегнетоелектричної фази, яка існує в несумірній фазі, відбувається релаксація рухомих дефектів та домішок у полі хвилі модуляції, приводячи тим самим до утворення хвилі густини дефектів.

Під дією електричного поля змінюється модульована структура (тобто система переходить із неоднорідного стану в однорідний), взаємодіючи при цьому із хвилею густини дефектів. Ця взаємодія спричиняє появу подвійних електрооптичних петель гістерезису.

Аналогічні електрооптичні петлі гістерезису можна отримати внаслідок переходу з однієї сумірної ділянки в іншу під дією напруженості електрооптичного поля, оскільки під її впливом змінюється період хвилі модуляції [63]. Для підтвердження цих припущень досліджено вплив напруження електричного поля на двозаломлюючі властивості кристала  $[N(CH_3)_4]_2ZnCl_4$  в ділянці існування сумірної сегнетоелектричної фази в несумірній фазі.

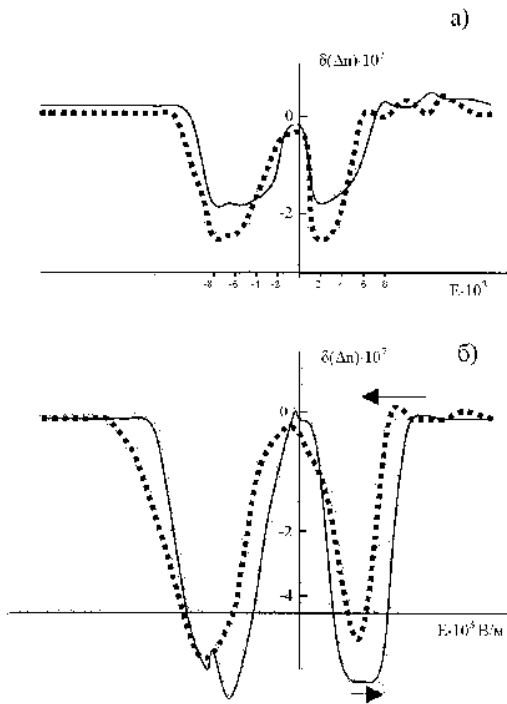


Рис. 22. Електрооптичні петлі гістерезису в координатах  $\delta(\Delta n_a) \sim f(E_a)$  в температурній ділянці існування сумірної — сегнетоелектричної фази при витримуванні зразка кристала  $[N(CH_3)_4]_2ZnCl_4$  протягом 0.5 год (а) і 3 год (б).

Згідно з рис. 22, починаючи зі значення  $E = 6 \div 8 \cdot 10^5$  В/м, при збільшенні величини напруженості електричного поля відбувається різка зміна  $\delta(\Delta n_a)$ . Зі зменшенням величини  $E_a$  також простежується аналогічна поведінка  $\delta(\Delta n_a)$  при дещо менших значеннях  $E_a$ . Отже, як показують результати, наведені на рис. 23, також спостерігаються подвійні електрооптичні петлі гістерезису при дещо більших

значеннях напруженості електричного поля. Спостережувані подвійні електрооптичні петлі в цьому випадку зумовлені переходом модульованої структури від одного сумірного значення хвильового вектора несумірності до іншого.

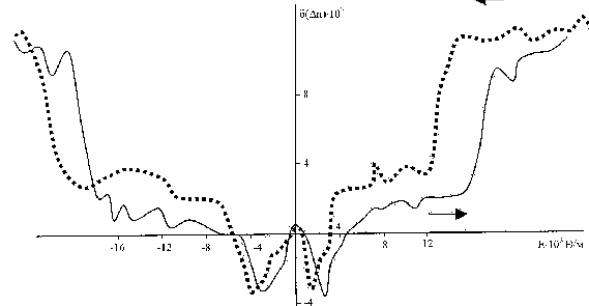


Рис. 23. Залежність величини декременту оптичного двоприменезаломлення кристала  $[N(CH_3)_4]_2ZnCl_4$  вздовж осі  $x$  від величини напруженості електричного поля  $E_x$  у сумірній сегнетоелектричній ділянці.

Аналогічної картини можна сподіватись і при інших зовнішніх впливах.

## ВИСНОВКИ

Одержані результати однозначно вказують на новий стан несумірних модульованих структур, які характеризуються суперпозицією декількох хвиль модуляції в одному кристалографічному напрямку. Сумарна модуляція структури в цьому випадку здійснюється через суперпозицію таких хвиль модуляції.

Відпалом у різних температурних точках усередині несумірної фази можна індукувати в кристалі складні модуляції, які нараховують декілька стабілізаційних хвиль.

- [1] A. P. Levanyuk, *Incommensurate phases in dielectrics. Part 1: Fundamentals. Part 2: Theory* (Noth Holland, Amsterdam, 1986).
- [2] Б. А. Струков, А. П. Леванюк, *Физические свойства сегнетоэлектрических явлений в кристаллах* (Наука, Москва, 1983).
- [3] Д. Г. Санников, *Физ. тверд. тела* **29**, 23 (1987).
- [4] R. Blinc, *Lect. Notes in Phys.* **217**, 461 (1984).
- [5] О. Г. Влох, Б. В. Каминский, И. И. Половинко, С. А. Свелеба, *Укр. фіз. журн.* **32**, 1510 (1987).
- [6] F. Mogeon, G. Dolino, M. Vallade, *Phys. Rev. Lett.* **62**, 179 (1989).
- [7] R. Blinc, *Phys. Rep.* **79**, 331 (1981).
- [8] H. Z. Cummins, *Phys. Rep.* **185**, 211 (1990).
- [9] H. Mashiyama, H. G. Unruh, *J. Phys. C: Solid State Phys* **15**, 5009 (1983).
- [10] G. Dolino, F. Mogeon, V. Soula, *Phase Transitions* **36**, 129 (1991).
- [11] V. Janovec, G. Godefroy, L. R. Godefroy, *Ferroelectrics* **53**, 333 (1984).
- [12] О. Г. Влох, И. И. Половинко, С. А. Свелеба, *Физ. тверд. тела* **31**, 287 (1989).
- [13] J. P. Jamet, *Phase Transitions* **11**, 335 (1988).
- [14] О. Г. Влох, В. С. Жмурко, И. И. Половинко, В. И. Мокрый, С. А. Свелеба, *Кристаллография* **36**, 769 (1991).
- [15] R. Blinc, P. Prelovsek, A. Levstic, *Phys. Rev. B* **29**, 1508 (1984).
- [16] J.P. Scot, *Ferroelectrics* **47**, 33 (1983).
- [17] Б. А. Струков, И. Уесу, В. М. Арутюнова, *Письма журн. эксп. теор. физ.* **35**, 424 (1982).
- [18] О. Г. Влох, Б. В. Каминский, И. И. Половинко, С. А. Свелеба, *Межведомствен. сборник: Оптика анизотропных сред* (Москва, 1987), с. 96.
- [19] R. Prelovsek, *Ferroelectrics* **54**, 29 (1984).
- [20] N. Nattermann, *J. Phys. C: Solid State Phys.* **18**, 5683



- (1985).
- [21] M. Hiroyuki, K. Hiroyuki, *Jap. J. Appl. Phys.* **24**, 802 (1985).
- [22] P. Prelovsek, R. Blinc, *J. Phys. C: Solid State Phys.* **17**, 577 (1984).
- [23] G. Errandonea, J. Schneck, J. C. Toledano, A. Litzler, H. Savary, J. Aubree, *Ferroelectrics* **53**, 247 (1984).
- [24] I. Polovinko, S. Sveleba, V. Kapustianyk, Z. Zhmurko, *Phys. Status Solidi (a)* **135**, 143(1993).
- [25] P. B. Littlewood, R. Rammal, *Phys. Rev. B* **38**, 2675 (1988).
- [26] F. Mogeon, G. Dolino, *J. Phys. France* **51**, 1939 (1990).
- [27] P. Lederer, J.P. Jamet, G. Montambaux, *Ferroelectrics* **66**, 25 (1986).
- [28] О. Г. Влох, Б. В. Каминский, А. В. Китык, И. И. Половинко, С. А. Свелеба, *Физ. тверд. тела* **27**, 3426 (1985).
- [29] Б. Ш. Багаутдинов, И. М. Шмытько, *Письма журн. эксп. теор. физ.* **59**, 171 (1994).
- [30] J. Kroupa, J. Fousek, *J. Phys. C.: Solid State Phys.* **21**, 5483 (1989).
- [31] C. L. Folcia, M. J. Tello, J. M. Perez-Mato, *Phys. Rev. B* **36**, 7181 (1987).
- [32] A. Onodera, F. Denoyer, J. Godard, M. Lambert, *J. Phys. France* **49**, 2065 (1988).
- [33] R. Fuentes-Samaniego, J. P. Hirth, *Phys. Status Solidi B* **125**, 147 (1984).
- [34] R. Blinc, P. Prelovsek, A. Levstic, C. Filipic, *Phys. Rev. B* **29**, 1508 (1984).
- [35] K. Namano, *Solid State Phys.* **23**, 538 (1988).
- [36] О. Г. Влох, И. И. Половинко, Б. В. Каминский, С. А. Свелеба, *Физ. электрон.* **35**, 31 (1987).
- [37] О. Г. Влох, А. В. Китык, И. И. Половинко, С. А. Свелеба *Укр. физ. журн.* **31**, 1389 (1986).
- [38] О. Г. Влох, И. И. Половинко, Б. В. Каминский, С. А. Свелеба, *Вест. Львов. ун-та, сер. физ.* **21**, 24 (1987).
- [39] О. Г. Влох, В. Б. Капустянык, И. И. Половинко, С. А. Свелеба, *Физ. електроника* **41**, 33 (1990).
- [40] О. Г. Влох, Б. В. Каминский, И. И. Половинко, С. А. Свелеба, *Укр. физ. журн.* **33**, 708 (1988).
- [41] О. Г. Влох, И. И. Половинко, С. А. Свелеба *Укр. физ. журн.* **34**, 673 (1989).
- [42] О. Г. Влох, Б. В. Каминский, И. И. Половинко, С. А. Свелеба, М., А. В. Богданова, А. Ю. Халахан, В. В. Петров, *Укр. физ. журн.* **34** 660 (1989).
- [43] O. G. Vlokh, I. I. Polovinko, S. A. Sveleba, A. V. Kityk, O. M. Mokry, *Ferroelectrics*, **94**, 425 (1989).
- [44] M. Bziouet, R. Almairac, P. Saint-Gregoire, *J. Phys. C: Solid Stat. Phys.* **20**, 2635 (1987).
- [45] И. И. Половинко, С. А. Свелеба, В. С. Жмурко, *Кристаллография*. **37**, 521 (1992).
- [46] I. Polovinko, S. Sveleba, V. Kapustianyk, V. Zhmurko, *Phys. Status Solidi (a)* **131**, 13 (1992).
- [47] И. И. Половинко, В. С. Жмурко, С. А. Свелеба, *Советско-польский симпозиум по физике сегнетоэлектриков и родственных материалов (тезисы докладов)*, (Львов, 1990), с. 111.
- [48] I. Polovinko, S. Sveleba, V. Zhmurko, *International symposium on domain structure of ferro electric and related materials. Abstracts.* (Nantes, 1992), p. 12.
- [49] I. Polovinko, S. Sveleba, V. Zhmurko, Z. Trybula, W. Kempinski, J. Stankowski, *Phys. Status Solidi (a)* **135**, 527 (1993).
- [50] D. J. Srolovitz, R. Eykholt, D. M. Barnett, J. P. Hirth, *Phys. Rev. B* **35**, 6107 (1987).
- [51] I. I. Polovinko, S. A. Sveleba, M. Bublyk, V. B. Kapustianik, *3<sup>rd</sup> Intern. Semp. On Domain Structure of Ferro electrics and Related Materials*, (Zakopane, Sept. 6–9 1994), p. 4.
- [52] R. Blinc, *Ferroelectrics* **53**, 83 (1984).
- [53] O. G. Vlokh, I. I. Polovinko, S. A. Sveleba, V. S. Zhmurko, V. B. Kapustianik, *Ferroelectrics* **131**, 137 (1992).
- [54] Б. Ш. Багаутдинов, В. В. Гладкий, С. Н. Каллаев, В. А. Кириков, И. М. Шмытько, *Письма журн. эксп. теор. физ.* **59**, 113 (1994).
- [55] J. Kusz, A. Pietraszko, D. Kucharczyk, *Phase Transitions* **37**, 261 (1992).
- [56] I. Polovinko, S. Sveleba, I. Katerynychuk, O. Semotyuk, *IX<sup>th</sup> international seminar on physics and chemistry of solid 28–31 maja*, (Czestochowy, 2003), p. 37.
- [57] Б. А. Струков, В. М. Арутюнова, И. Уесу, *Физ. тверд. тела* **24**, 3061 (1982).
- [58] K. Deguchi, *J. Crystallogr. Soc. Jpn.* **30**, 210 (1988).
- [59] B. A. Strtukov, P. S. Smirnov, S. A. Taraskin, Y. Uesu, *Ferroelectrics Lett.* **11**, 147 (1984).
- [60] L. Kubin, Y. Estrin, *Acta metall.* **33**, 397 (1985).
- [61] V. A. Golovko, D. G. Sannikov, *J. Phys.: Cond. Matt.* **1**, 5497 (1989).
- [62] S. A. Sveleba, V. S. Zhmurko, Yu. I. Pankivskiy, *Acta Phys. Pol. A* **97**, 337 (2000).
- [63] S. A. Sveleba, I. I. Polovinko, V. S. Zhmurko, Yu. I. Pankivskui, *Ferroelectrics* **222**, 359 (1999).
- [64] Ю. А. Изюмов, В. М. Сыромятников, *Фазовые переходы и симметрия кристаллов* (Наука, Москва. 1984).

## INTERACTION OF THE MODULATED STRUCTURE WITH DEFECTS IN CRYSTALS WITH INCOMMENSURATE PHASE

S. Sveleba, I. Katerynychuk, O. Semotyuk, I. Kunyo  
*Ivan Franko National University of Lviv, Department for Non-Linear Optics,  
 107 gen. Tarnavskoho St., Lviv  
 E-mail: kno@rd.wups.lviv.ua*

In this work both experimental and theoretical aspects of the interaction of incommensurate structure with defects in  $(N(CH_3)_4)_2MeCl_4$ , Me = Cu, Zn, Fe crystals were studied. There were investigated three variants of this interaction depending on the ratio of the rates of the modulated structure and the rate of defects and impurities in the sample.