

УДК 537.94  
PACS number(s): 78.20.Fm

## ПЕРЕХІД МІЖ МЕТАСТАБІЛЬНИМИ СТАНАМИ У НЕСПІВМІРНІЙ ФАЗІ КРИСТАЛІВ $[N(CH_3)_4]_2CuCl_4$

С. Свелеба, О. Семотюк, І. Катеринчук, І. Куньо, О. Фіцич

*Львівський національний університет імені Івана Франка  
вул. ген. Тарнавського, 107, 79017 Львів,  
e-mail: kno@electronics.wups.lviv.ua*

Розглянуто температурні залежності двозаломлення у неспівмірній фазі кристалів  $N(CH_3)_4]_2CuCl_4$ . З'ясовано, що в умовах існування стохастичного режиму простежено немонотонну поведінку  $\delta(\Delta n) \sim f(T)$ . Температурну залежність двоприменезаломлення пояснено на основі феноменологічної теорії.

*Ключові слова:* неспівмірна фаза, фазовий перехід, солітон, стохастичний режим.

Кристали групи  $A'A''BX_4$  мають складну послідовність фазових переходів, у тім числі і неспівмірну фазу. Згідно з феноменологічною теорією фазових переходів виникнення просторової модуляції структури зумовлено існуванням інваріанта Лівшиця у розкладі термодинамічного потенціала. Його наявність визначається характером нестабільності у вихідній фазі і є неявним відображенням обмеженої стабільності цієї фази. Яскравим прикладом такої ситуації є кристали  $[N(CH_3)_4]_2CuCl_4$  ( $(TMA)_2CuCl_4$ ). Послідовність фазових переходів кристала  $(TMA)_2CuCl_4$  така: вихідна фаза,  $T_i=297,1 \rightarrow$  неспівмірна фаза,  $T_c=291,1 \rightarrow$  сегнетоелектрична фаза,  $T=263,1 \rightarrow$  сегнетоеластична фаза. У вихідній фазі даних кристалів простежується нееквівалентність двох органічних комплексів. Тобто обидва іони TMA спотворені у вихідній фазі і для TMA' [1] деформація більша, ніж для TMA''.

Два стани органічних груп TMA' і TMA'' у вихідній фазі пов'язані між собою поворотами навколо осей, які потрапляють через центри їх мас. Для TMA' ця вісь орієнтована вздовж псевдогексагональної осі  $c$ . Для TMA'' ця вісь розміщена майже вздовж  $b$ . У кристалах  $(TMA)_2CuCl_4$  простежено температурну поведінку хвильового вектора у вигляді "чортової драбини" [1], а також локалізацію хвильового вектора неспівмірності на сумірних значеннях вищого порядку [2, 3].

Розглянемо різні режими неспівмірної модуляції досліджуваних кристалів. В околі  $T_i$  є синусоїдальний режим модуляції ґратки. Тут відхилення атомів від рівноважних положень вихідної фази модулюються синусоїдою.

За умови впливу співмірності на неспівмірну фазу (зокрема ефекту скінченності розмірів зразка) за умови наближення температури фазового

переходу  $T_c$  кристал переходить в так званий солітонний режим. У цьому режимі модуляція відхилень атомів вже не є синусоїдальною, а П-подібною.

Температурний інтервал існування неспівмірної фази тут можна трактувати як послідовність метастабільних станів, розділених між собою перехідними областями.

За умови, коли величина сили взаємодії між солітонами наближається до сили взаємодії їх з дефектами має місце стохастичний режим модульованої структури [4]. В такому випадку у метастабільному стані утворюється хвиля густини дефектів. У перехідній по температурі області виникає хвиля суперпозиції з хвильовим вектором, рівним різниці хвильових векторів хвиль, які беруть участь у суперпозиції:

$$q = q_1 - q_2$$

Її амплітудне значення є більшим амплітудних значень хвиль, які беруть участь у її формуванні. Отож ця хвиля і вносить значний вклад у поведінку оптичного двозаломлення в перехідній області, що виявляється на температурних залежностях двозаломлення у вигляді піків.

Отже, природа цього явища полягає у співіснуванні кількох просторово модульованих хвиль в одному кристалографічному напрямку [5].

Як ми бачимо, перехід від одного метастабільного стану до іншого відбувається через проміжну за температурою область, де існує хвиля модуляції з різницеvim вектором. Ця хвиля є нестабільною як на часовій, так і на температурній шкалі. Тому ми говоримо, що температурний інтервал її існування – це температурний інтервал хаотичної фази. Відомо, що ця фаза може бути неспівмірною.

Отже, у діелектричних кристалах  $[N(CH_3)_4]_2CuCl_4$  у перехідній за температурою області, між метастабільними станами може співіснувати кілька хвиль модуляції в одному кристалографічному напрямку [6]. Коли таке співіснування можливе, то виникає хвиля модуляції з різницеvim хвильовим вектором [7]. Тобто, у діелектричних кристалах  $[N(CH_3)_4]_2CuCl_4$  за цих умов можлива поява стохастичного режиму модульованої структури. У цьому випадку неспівмірну структуру розглядають як таку, що містить фрагменти сумірних структур з різними періодами. Усереднений по всій хаотичній сукупності період може бути неспівмірним з періодом вихідної фази [4].

У цій статті досліджено особливості поведінки двопротенезаломлення в умовах існування стохастичного режиму модульованої структури.

Кристали  $(TMA)_2CuCl_4$  вирощували з водного розчину солей, взятих у стехіометричному співвідношенні за кімнатної температури. Досліджували приріст лінійного оптичного двозаломлення методом Сенармона з використанням автоматизованої установки з модуляцією оптичного сигналу на довжині хвилі  $\lambda=633$  нм. Температуру досліджених зразків вимірювали з точністю до 0,01 К завдяки автоматизованій системі на основі “Утрекс”.

Температурну еволюцію модульованої структури в солітонному режимі визначають співвідношенням між силами  $F_{ss}$  і  $F_{sd}$ , де  $F_{ss}$  – сила взаємодії між солітонами,  $F_{sd}$  – між солітонами та дефектами. Зокрема у працях [2, 3, 8] було зазначено, що дефекти з великим коефіцієнтом дифузії зумовлюють розширення температурного інтервалу існування метастабільних станів. Рухомі дефекти внаслідок їх упорядкування в полі модульованої структури зумовлюють

просторову зміну концентрації дефектів за зразком (хвилю густини дефектів), тобто, згідно з [7, 9, 10] до виникнення хвилі деформації основної структури. В останньому випадку внаслідок суперпозиції хвилі модуляції та хвилі деформації в кристалі може виникати хвиля модуляції з різницеvim значенням хвильового вектора [5, 6]. В такому випадку у зразку в одному кристалографічному напрямку співіснують декілька просторових хвиль модуляції. Із зростанням концентрації дефектів у зразку або шляхом впорядкування існуючих неконтрольованих дефектів та домішок, відбувається збільшення сили взаємодії дефект-солітон [4]. У кінцевому підсумку змінюється співвідношення між силами  $F_{ss}$  і  $F_{sd}$ . Тому розглянемо феноменологічний опис такого стану кристала. За умови впливу малих концентрацій неконтрольованих дефектів та домішок на модульовану структуру, їхню дію на неї можна замінити впливом електричного поля [11], то термодинамічний потенціал згідно з працями [12,13] можна подати

$$f(z) = f_0 + \frac{\alpha}{2}\rho^2 + \frac{\beta}{4}\rho^4 + \alpha'\rho^{2l} \cos 2l\varphi - g\rho^2 \frac{\partial\varphi}{\partial z} + \frac{h\rho^2}{2} \left(\frac{\partial\varphi}{\partial z}\right)^2 + \frac{h}{2} \left(\frac{\partial\rho}{\partial z}\right)^2 + \alpha_1 E_1 \rho^l \cos l\varphi + \frac{E_1^2}{2g}, \quad (1)$$

який містить інваріант Лівшиця  $\frac{h\rho^2}{2} \left(\frac{\partial\varphi}{\partial z}\right)^2 + \frac{h}{2} \left(\frac{\partial\rho}{\partial z}\right)^2$ , інваріант Дзялошинського

$\alpha'\rho^{2l} \cos 2l\varphi$  та доданок  $\alpha_1 E_1 \rho^l \cos l\varphi$ , що описує вплив електричного поля на модульовану структуру. В цьому випадку вплив електричного поля ототожнюють з впливом нерухомих дефектів та домішок на модульовану структуру –  $E(z) = \text{const}$  (дефекти та домішки рівномірно розподілені по зразку). Шукатимемо розв'язок для амплітуди  $\rho$  і фази  $\varphi$  параметра порядку шляхом розв'язування системи рівнянь Ейлера:

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

Беручи до уваги, що просторові зміни амплітуди параметра порядку є незначними  $\frac{\partial\rho}{\partial z} = 0$ , отримаємо:

$$\begin{cases} \alpha\rho + \beta\rho^3 - 2l\alpha'\rho^{2l-1} \cos 2l\varphi - 2g\rho \frac{\partial\varphi}{\partial z} + h\rho \left(\frac{\partial\varphi}{\partial z}\right)^2 + \alpha_1 E_1 \rho^{l-1} \cos l\varphi - h \frac{\partial^2\rho}{\partial z^2} = 0 \\ \alpha'\rho^{2l} 2l \sin 2l\varphi - \alpha_1 E_1 \rho^l \sin l\varphi - h\rho^2 \frac{\partial^2\varphi}{\partial z^2} = 0 \end{cases},$$

а рівняння мінімізації потенціалу (1) стає рівнянням математичного маятника:

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

Залежність фази від координати  $z$  має вигляд:

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

де  $\Xi$  – постійна інтегрування,  $\gamma = h\rho^2$ .

Згідно з виразом (2), нерухомі дефекти та домішки змінюють просторовий розподіл фази параметра порядку по зразку так, що під впливом поля дефектів та домішок відбувається локалізація вектора неспівмірності на сумірних значеннях вищого порядку, з розширенням температурних інтервалів їх існування.

На експерименті це проявляється у збільшенні температурних інтервалів метастабільних станів [8,14].

Коли ж відбувається взаємодія рухомих дефектів із неспівмірною структурою [15], то цей процес супроводжується утворенням хвилі густини дефектів. Тому розглянемо випадок, коли величина електричного поля у зразку є просторово промодульованою з періодом, що дорівнює періодові модульованої структури, тобто  $E_l = bE_0 \cos(l_1\varphi_1)$ ,  $l_1=l$ . За цієї умови густину вільної енергії кристала можна подати у вигляді:

$$f(z) = f_0 + \frac{\alpha}{2}\rho^2 + \frac{\beta_1}{4}\rho^4 + \frac{1}{2}\alpha_1 bE_0 \rho^l + \left( \frac{1}{2}\alpha_1 bE_0 \rho^l - \alpha'_l \rho^{2l} \right) \cos 2l\varphi - g\rho^2 \frac{\partial \varphi}{\partial z} + \frac{h}{2}\rho^2 \left( \frac{\partial \varphi}{\partial z} \right)^2 + \frac{h}{2} \left( \frac{\partial \rho}{\partial z} \right)^2 - \frac{E_l^2}{2\vartheta},$$

а зміну фази параметра порядку можна описати виразом

$$\frac{\partial \varphi}{\partial z} = \left[ C - \frac{(\alpha'_l \rho^{2l-2} - \alpha_1 bE_0 \rho^{l-2})}{h} \cos 2l\varphi \right]^{\frac{1}{2}}. \quad (3)$$

Отримані результати (3) схожі до тих, які одержані під впливом нерухомих дефектів (2). Отже, як нерухомі дефекти, так і хвиля густини дефектів спричиняє розширення температурного інтервалу існування метастабільного стану.

На експерименті зі зниженням швидкості зміни температури  $dT/dt$  простежуємо перехід від гладкої залежності  $\delta(\Delta n)$  від температури до східчастої [16].

Відомо, що в умовах “в’язкої” взаємодії модульованої структури з дефектами і домішками періоди просторового розподілу густини дефектів і модульованої структури не збігаються, але є близькими  $E_l = bE_0 \cos l_1\varphi_1$ ,  $l_1 \neq l$ . За цих умов густину вільної енергії можна записати так:

$$f(z) = f_0 + \frac{\alpha}{2}\rho^2 + \frac{\beta_1}{4}\rho^4 - \alpha'_l \rho^{2l} \cos 2l\varphi - g\rho^2 \left( \frac{\partial \varphi}{\partial z} \right)^2 + \frac{h}{2} \left( \frac{\partial \rho}{\partial z} \right)^2 + \frac{1}{2}\alpha_1 bE_0 \rho^l \cos(l\varphi - l_1\varphi_1) + \frac{1}{2}\alpha_1 bE_0 \rho^l \cos(l\varphi + l_1\varphi_1) \quad (4)$$

Розв'язок рівняння мінімізації цього потенціалу отримуємо у вигляді:

$$\frac{\partial \varphi}{\partial z} = \left( C + \frac{a_1 b E_0 \rho^{l-2} \cos(l\varphi - l_1 \varphi_1)}{h} + \frac{a_1 b E_0 \rho^{l-2} \cos(l\varphi + l_1 \varphi_1)}{h} - \frac{2\alpha'_l \rho^{2l-2} \cos 2l\varphi}{h} \right)^{\frac{1}{2}}. \quad (5)$$

З виразу (4) густина вільної енергії кристала зростає на величину  $\frac{1}{2} a_1 b E_0 \rho^l$  за рахунок близькості до одиниці  $\cos(l\varphi - l_1 \varphi_1)$ .

Що стосується виразу (5), то в ньому домінуватиме схожий доданок. Отже, у перехідній за температурою співіснують дві хвилі модуляції. Унаслідок їх суперпозиції утворюється хвиля з різницею значенням хвильового вектора. Беручи до уваги висновки праці [7], отримані результати свідчать про новий стан модульованої структури, який характеризується суперпозицією декількох хвиль модуляції вздовж одного кристалографічного напрямку. Керуючись описом оптичного двозаломлення, відомо, що його приріст за умови "в'язкої" взаємодії хвилі модуляції з дефектами і домішками в напрямках, перпендикулярних до напрямку модуляції, є пропорційним до просторової зміни фази параметра порядку  $\left( \delta(\Delta n) \sim \frac{\partial \varphi}{\partial z} \right)$  [3, 17]. Тобто,

$$\delta(\Delta n) \sim \left( C + \frac{a_1 b E_0 \rho^{l-2} \cos(l\varphi - l_1 \varphi_1)}{h} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (6)$$

На рис. 1 показано приріст оптичного двозаломлення у перехідній за температурою області в умовах "в'язкої" взаємодії та теоретично розраховано залежність  $\delta(\Delta n)$  згідно з виразом (6). Отримані залежності добре узгоджуються між собою.

Згідно з рисунком у перехідній за температурою області ( $T_1 < T_2$ ) простежено аномальну зміну  $\delta(\Delta n)$  у вигляді виплеску. Ця температурна поведінка обмежена незначними змінами  $\delta(\Delta n)$ , що спостерігаються при  $T_1$  і  $T_2$ . Такі зміни  $\delta(\Delta n)$  при  $T_1$  і  $T_2$  свідчать про наявність фазового переходу з метастабільного стану в перехідну область.

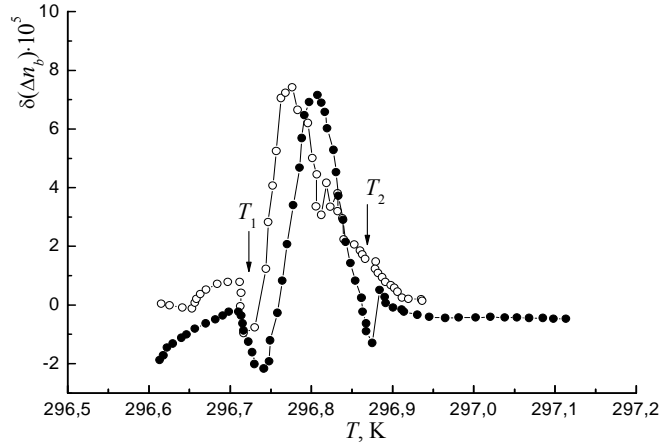


Рис. 1. Температурні залежності оптичного двопронезаломлення у неспівмірній фазі кристала  $[N(CH_3)_4]_2CuCl_4$ .  $\circ$  – експериментальна крива;  $\bullet$  – теоретична крива.  $T_1$  – температура входження в неспівмірну область, а  $T_2$  – виходу з неї у процесі нагрівання. Теоретична крива зсунута для більшої наочності

Отримані результати базуються на моделі, яка полягає в тому, що в перехідній області є суперпозиція двох хвиль модуляції, одна з яких незмінна і відповідає хвилі густини дефектів. Як результат такої суперпозиції утворюється хвиля модуляції з різницеvim значенням хвильового вектора, яка і визначає аномальну поведінку оптичного двозаломлення в умовах “в’язкої” взаємодії. Ця просторова хвиля модуляції визначає температурний інтервал існуванням хаотичної фази.

Оскільки приріст  $\delta(\Delta n)$  у НС фазі несе інформацію про температурну еволюцію хвильового вектора модульованої структури, то керуючись даними, наведеними на рис. 1, розрахована за методикою, описану у праці [18] залежність  $q(T)$  показана на рис. 2. Під час розрахунку  $\Delta q$  використовували висновки праці [18], де у перехідній за температурою області  $q \sim \delta(\Delta n)$ . З іншого боку, керуючись експериментальними результатами роботи [19] по малокутовому розсіюванні світла мало місце відхилення від основного світлового пучка на 2 мм при відстані 1 м від кристала до джерела (перший максимуму дифрагованого пучка). Значення хвильового вектора хвилі суперпозиції можна отримати з виразу

$$\Delta q = q_1 - q_2 = \frac{2\pi c}{d} = 2,5 \cdot 10^{-5} \text{ (} c \text{ – параметр елементарної комірки у вихідній фазі;}$$

$d \sim 316,5 \cdot 10^{-6} \text{ м – період хвилі суперпозиції, отриманий з результатів малокутового розсіювання). Отримане значення } \Delta q \text{ узгоджується з його величиною, отриманою на підставі двозаломлюючих досліджень.}$

Враховуючи результати праці [13], поведінка хвильового вектора неспівмірної структури за умови, коли НС фаза обмежена двома співмірними фазами ( $C_1$  і  $C_2$  [12]) аналогічна до отриманої нами залежності, показаної на рис. 2. Це дає підставу говорити, що перехід між двома метастабільними станами відбувається через проміжну за температурою модульовану фазу (можливо з неспівмірним значенням хвильового вектора  $\Delta q = q_1 - q_2$ ).

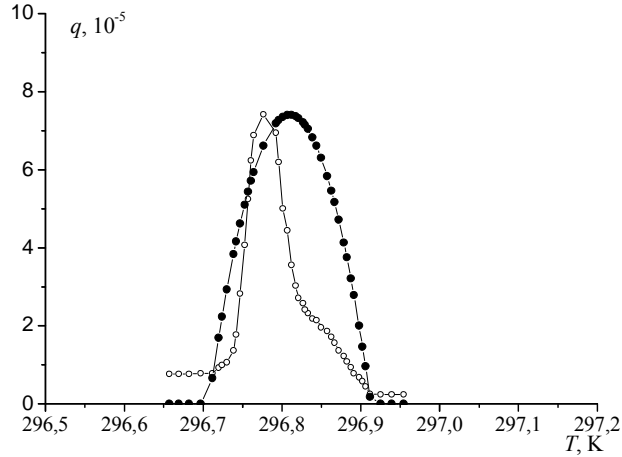


Рис. 2. Температурна залежність хвильового вектора модульованої структури в перехідній області кристала  $[N(CH_3)_4]_2CuCl_4$ : ● – експериментальна крива, отримана, керуючись [18]; ○ – теоретична крива згідно з працею [13]

Для підтвердження останнього припущення розглянемо розраховану температурну поведінку  $\frac{d(\delta(\Delta n))}{dT}$ , яка несе інформацію щодо поведінки теплоємності згідно з працею [13] в досліджуваних температурних інтервалах (у перехідних областях).

З [20] відомо, що  $\frac{d(\delta(\Delta n))}{dT}$  має ту ж поведінку, що і теплоємність  $C$ .

Розраховану залежність  $\frac{d(\delta(\Delta n))}{dT} \sim f(T)$  показано на рис. 3. Загалом залежність

$\frac{d(\delta(\Delta n))}{dT} \sim f(T)$  відтворює теоретичну криву, а саме в точках переходів  $T_1$  і  $T_2$  відбуваються стрибкоподібні зміни теплоємності з монотонною її параболічною залежністю в перехідній області (НС фази). У співмірних фазах (метастабільних станах)  $\frac{d(\delta(\Delta n))}{dT}$  набуває малих значень порівняно із перехідними за

температурою областями [13]. Що стосується  $\frac{d(\delta(\Delta n))}{dT}$  в околах вищезгаданих температур зі сторони співмірних фаз, то спостережувана аномальна її поведінка, на нашу думку, пов'язана з процесами зародження та анігіляції солітонів з різними періодами та умовами їх суперпозиції (умовами зародження та зникнення хаотичної фази).

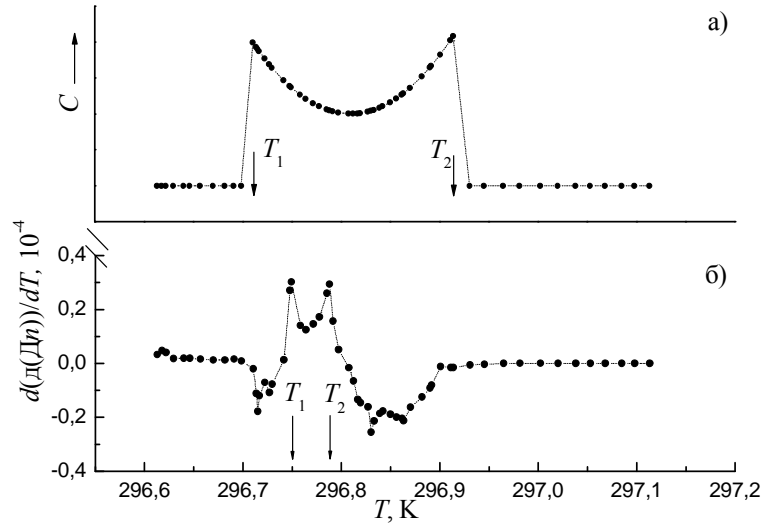


Рис. 3. Температурна залежність теплоємності у перехідній області, теоретично розрахована

(а) в [13] і отримана з експериментальної залежності  $\frac{d(\delta(\Delta n))}{dT} \sim f(T)$  величина

$\frac{d(\delta(\Delta n))}{dT}$  (б);  $T_1, T_2$  – температури входу і виходу з перехідної області відповідно

Якщо фаза, що виникає у перехідній за температурою області є хаотичною, то температурний інтервал її існування має залежати від взаємодії дефектів та домішок з солітонами, тобто від співвідношення сил  $F_{ss}$  і  $F_{sd}$ . За умови наближення величини сили пінінгу до величини сили солітон-солітоної взаємодії відбуватиметься зростання температурного інтервалу перехідної області (див. [11]), а отже, має зростати температурний інтервал існування хаотичної фази та величини аномальних змін  $\delta(\Delta n)$ . Ці припущення підтверджені отриманими експериментальними результатами за дослідженням впливу швидкості зміни температури на температурну поведінку  $\delta(\Delta n)$  у перехідній області (рис. 4). Зменшення швидкості зміни температури супроводжується розширенням температурного інтервалу існування перехідної за температурою області, так і зростання величини аномальних змін  $\delta(\Delta n)$  у ній.



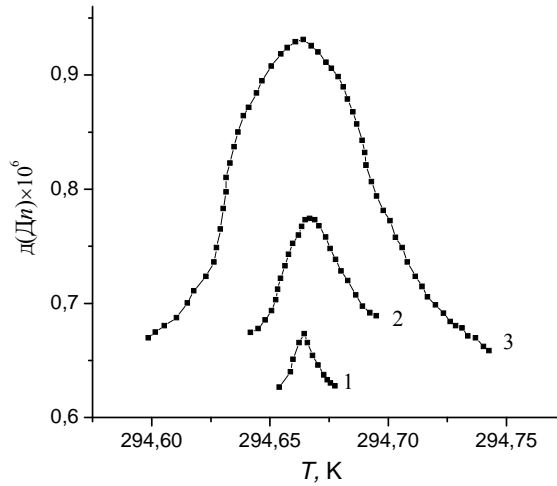


Рис. 4. Температурні залежності  $\delta(\Delta n)$  у перехідній області для кристала  $[\text{N}(\text{CH}_3)_4]_2\text{CuCl}_4$  за швидкості зміни температури  $dT/dt=150$  (1), 80 (2), 15 мК/год (3)

Керуючись вищенаведеними результатами перехідну область доцільно розглядати як температурний інтервал існування хаотичної фази, період хвилі модуляції якої може бути неспівмірним з періодом вихідної фази. Температурна еволюція двопронезаломлення за умови виникненням стохастичного режиму НС модуляції характеризується немонотонною, аномальною поведінкою і несе інформацію про динамічні процеси надструктури.

Оскільки суперпозиція наявних хвиль модуляції відбувається не лише у перехідних областях [6, 7], то вклад її в температурну поведінку  $\delta(\Delta n)$  має спостерігатися в усій області існування НС фази.

Зазначимо, що в перехідній області її вклад є найбільшим за умови, що довжина хвилі виникаючої модуляції стає рівною або більшою за довжину хвилі з допомогою якої проводять дослідження (див. працю про малокутове розсіяння світла [19]).

З метою виявлення вкладу суперпозиції хвиль модуляції поза вищезгаданим температурним інтервалом записували хвилі густини дефектів в НС фазі кристала  $[\text{N}(\text{CH}_3)_4]_2\text{CuCl}_4$  при  $T=295$  К (див. рис. 5, а). Залежності  $\delta(\Delta n) \sim f(T)$  характеризуються збільшенням температурного глобального гістерезису в неспівмірній фазі (див. рис. 5, б). З отриманих результатів, як і очікувалось, впливає, що в околі температури стабілізації кристала величина температурного глобального гістерезису є найбільшою з подальшим її зменшенням під час охолодження чи нагрівання кристала в НС фазі.

Отже, отримані результати підтверджують висновки праці [7], де було зазначено, що суперпозиція наявних хвиль модуляції (зокрема хвилі густини дефектів і хвилі модуляції) простежено практично в усій області існування НС фази.

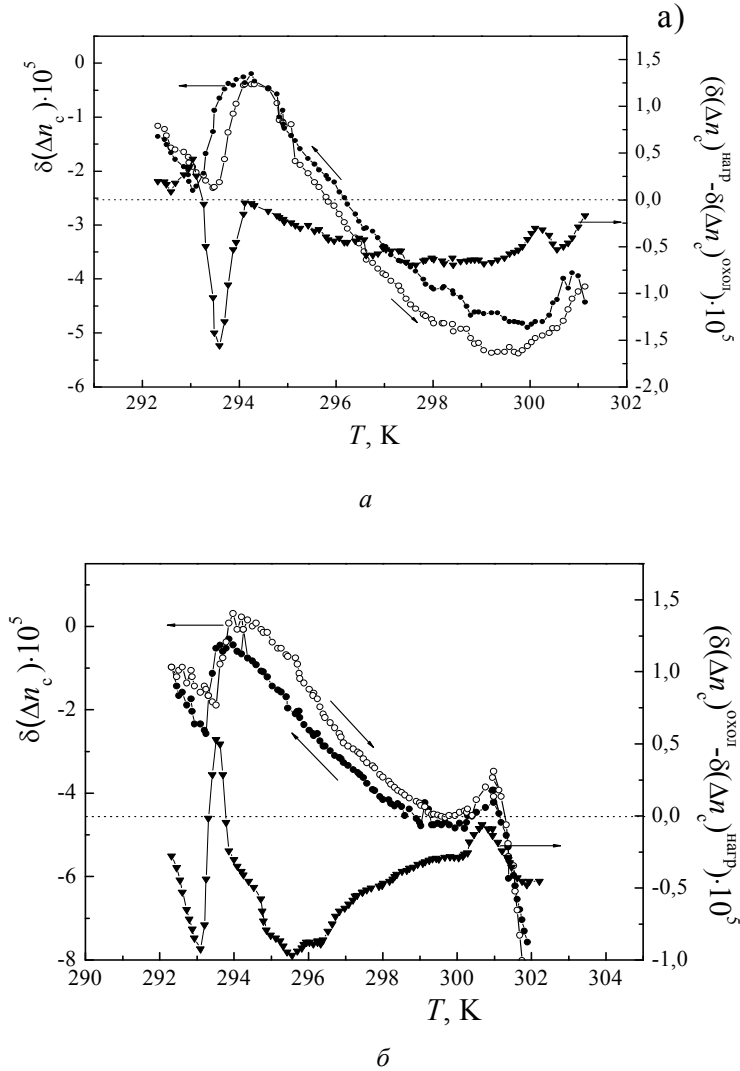


Рис. 5. Температурні залежності  $\delta(\Delta n)$  отримані під час нагрівання і охолодження, і їх різниця до витримки при  $T=295$  К (а) та умови повторного циклювання (б) для кристала  $[\text{N}(\text{CH}_3)_4]_2\text{CuCl}_4$  в околі НС фази

Згідно з отриманими результатами за температурною зміною  $\delta(\Delta n)$  кристалів  $[\text{N}(\text{CH}_3)_4]_2\text{CuCl}_4$ , коли модульована структура набуває стохастичного режиму, температурна залежність двозаломлення характеризується аномальною поведінкою. Це виявляється у наявності аномалій  $\delta(\Delta n)$  у вигляді виплесків за умов “в'язкої взаємодії” та нелінійної залежності  $\delta(\Delta n)$  в усьому температурному інтервалі існування НС фази. За умови існування хвилі густини дефектів перехід від одного метастабільного стану до іншого відбувається через проміжну за

температурою, область в якій співіснують кілька хвиль модуляцій (хвиля густини дефектів і хвиля модульованої структури). За певних умов унаслідок їх суперпозиції виникає хвиля модуляції із різницеvim значенням хвильового вектора  $\Delta k$ . Значення його є змінною величиною і залежить від співвідношення сил  $F_{ss}$  і  $F_{sd}$ . Динаміку модульованої структури в умовах існування стохастичного режиму можна розглядати як послідовність метастабільних станів, розділених перехідними областями – температурними інтервалами існування хаотичної фази.

1. Sawada S., Yamaguchi T., Suzuki H., Shimizu F. Experimental Studies on Phase Transitions in Ferroelectric  $[\text{N}(\text{CH}_3)_4]_2\text{ZnCl}_4$  // J. Phys. Soc. Japan. 1985. Vol. 54. N 8. P. 3129–3135.
2. Свелеба С. А., Катеринчук І. М., Семотюк О. В., Куньо І. М. Взаємодія модульованої структури з дефектами у кристалах з несумірною фазою // Журн. фіз. досліджень. 2005. Т. 9. № 1. С.334–350.
3. Свелеба С. А., Катеринчук І. Н., Семотюк О. В. и др. Взаимодействие волны плотности дефектов с модулированной структурой в кристаллах с несоизмерной фазой // Журн. прикл. спектроскопии. 2005. Т. 72. С. 632–639.
4. Изюмов Ю. А., Сиромятников В. М. Фазовые переходы и симметрия кристаллов. М.: Наука, 1984. 245 с.
5. Беклемішев С. А., Ключихин В. А. Пиннинг солитонов в ангармонической цепочке модели Френкеля–Конторовой // Структура и динамика молекулярных систем. 2003. Вып. X. Часть 1. С. 283–286.
6. Багаутдинов Б. Ш., Гладкий В. В., Каллаев С. Н. и др. Многоволновые модулированные состояния в кристаллах  $[\text{N}(\text{CH}_3)_4]_2\text{ZnCl}_4$  // Письма в ЖЭТФ. 1994. Т. 59. Вып. 2. С. 113–117.
7. Багаутдинов Б. Ш., Шмытько И. М. Дифракционные свидетельства образования волн плотности дефектов в несоизмерных модулированных структурах // Письма в ЖЭТФ. 1994. Т. 59. Вып. 3. С. 171–174.
8. Влох О. Г., Жмурко В. С., Половинко И. И. и др. Индуцированные дефектами соразмерные фазы в кристаллах  $[\text{N}(\text{CH}_3)_4]_2\text{BCl}_4$  (B = Zn, Cu, Mn) and  $(\text{NH}_2(\text{CH}_3)_2)_2\text{CuCl}_4$  // Кристаллография. 1991. Т. 36. С. 769–771.
9. Свелеба С. А., Катеринчук І. М., Семотюк О. В., Куньо І. М. Природа ефекту термооптичної пам'яті в несумірній фазі кристалів групи  $\text{A}_2\text{BX}_4$  // Вісн. Львів. ун-ту. Сер. фіз. 2004. Вип. 37. С. 268–273.
10. Polovynko I. I., Sveleba S. A., Katerynchuk I. M., Semotyuk O. V. Optical properties of the crystals with the incommensurate phases // RNAOPM-2005, 01-05 June, Lutsk-Shatsk Lakes, Volyn, Ukraine. P. 11–13.
11. Polovynko I. I., Sveleba S. A., Bublyk M., Kapustianik V. B. 3rd Intern. Semp. On Domain Structure of Ferroelectrics and Related Materials, Zakopane, Sept. 6-9 1994. Wroclaw: Wroclaw University, 1994. P. 4–6.
12. Санников Д. Г. Феноменологическое описание дьявольской лестницы // Письма в ЖЭТФ. 1989. Т. 96. Вып. 6(12). С. 2198–2208.
13. Санников Д. Г. Последовательность двух непрерывных переходов, ограничивающие одну несоизмерную фазу // Физ. тверд. тела. 1987. Т. 29. Вып. 1. С. 23–27.

14. *Половинко И. И., Свелеба С. А., Жмурко В. С.* Модификация несоизмерной фазы в облученных кристаллах  $[N(CH_3)_4]_2FeCl_4$  // Кристаллография. 1992. Т. 37. Вып. 2. С. 521–524.
15. *Srolovitz D. J., Eykholt R., Barnett D. M., Hirth J. P.* Moving discommensurations interacting with diffusing impurities // Phys. Rev. B. 1987. Vol.35. N 12. P. 6107–6121.
16. *Vlokh O. G., Polovinko I. I., Sveleba S. A. et. al.* Manifestation of interaction of incommensurate modulated structure with defects in the birefringence properties of  $[N(CH_3)_4]_2FeCl_4$  crystals // Ferroelectrics. 1992. Vol. 131. P. 137–143.
17. *Sveleba S., Polovinko I. I., Zhmurko V., Pankivskyi Yu.* Manifestation of coexistence of the long – periodic phase with the incommensurate phase. // Acta Phys. Pol. A. 1999. Vol. 96. N 3–4. P. 437–444.
18. *Свелеба С. А., Половинко И. И., Панківський Ю. І.* и др. Співіснування сумірних фаз у несумірній фазі // Укр. фіз. журн. 1997. Т.42, № 3. С. 294–300.
19. *Sveleba S., Kapustianik V., Polovinko I., Bubyk M., Zhmurko V.* Behaviour of the optical indicatrix and small-angle light scattering in the case of “devil’s staircase” // Phys. Status Solidi (B). 1994. Vol.183. P. 291–298.
20. *Семак Д. Г., Різак В. М., Різак І. М.* Фото-термоструктурні перетворення халькогенідів. Ужгород: Закарпаття, 1999. 293 с.

**TRANSITION BETWEEN METASTABLE STATES  
IN THE INCOMMENSURATE PHASE OF  $[N(CH_3)_4]_2CuCl_4$  CRYSTALS**

**S. Sveleba, O. Semotyuk, I. Katerynychuk, I. Kunyo, O. Phitsych**

*Ivan Franko Lviv National University, Non-Linear Physics Department  
Hen. Tarnavskogo Str., 107, UA–79017 Lviv, Ukraine  
e-mail: kno@electronics.wups.lviv.ua*

Temperature dependencies of the optical birefringence in the incommensurate phase of  $[N(CH_3)_4]_2CuCl_4$  crystals were studied. It has been found the non-monotonous behavior of  $\delta(\Delta n) \sim f(T)$  in the conditions of the stochastic mode existence. The temperature dependency of the optical birefringence was explained on the basis of the phenomenological theory.

*Key words:* incommensurate phase, phase transition, soliton, stochastic mode.

Стаття надійшла до редколегії 02.07.2007

Прийнята до друку 08.07.2008