

НАЦІОНАЛЬНА АКАДЕМІЯ НАУК УКРАЇНИ  
ІНСТИТУТ ФІЗИКИ КОНДЕНСОВАНИХ СИСТЕМ

На правах рукопису



*СОКОЛОВСЬКИЙ Руслан Олегович*

**ДОСЛІДЖЕННЯ НЕВПОРЯДКОВАНИХ  
ІЗІНГІВСЬКИХ МОДЕЛЕЙ  
У КЛАСТЕРНОМУ НАБЛИЖЕННІ**

01.04.02 — теоретична фізика

**А В Т О Р Е Ф Е Р А Т**

дисертації на здобуття наукового ступеня  
кандидата фізико-математичних наук

ЛННБ України ім.В.Стефаніка



00754054 (P)

Дисертація

Робота виконана в Інституті фізики конденсованих систем Національної академії наук України

Науковий керівник — доктор фізико-математичних наук  
Р.Р.Левицький

Офіційні опоненти — доктор фізико-математичних наук,  
професор І.О.Вакарчук

— доктор фізико-математичних наук,  
професор М.В.Ткач

Провідна організація — Інститут теоретичної фізики  
НАН України ім. М.М.Боголюбова

Захист відбудеться “18” червня 1997 року о “15<sup>30</sup>” на засіданні спеціалізованої вченої ради Д 04 18 01 при Інституті фізики конденсованих систем Національної академії наук України за адресою: 290011 м. Львів-11, вул. Свенціцького, 1.

З дисертацією можна ознайомитись у науковій бібліотеці Інституту фізики конденсованих систем НАН України за адресою: 290026 м. Львів-26, вул. Козельницька, 4.

Автореферат розіслано “18” травня 1997 року.

Вчений секретар  
спеціалізованої вченої ради,  
кандидат фіз.-мат. наук

Т.Є.Крохмальський

## ЗАГАЛЬНА ХАРАКТЕРИСТИКА РОБОТИ

**Актуальність теми.** Проблема дослідження неупорядкованих сегнетоелектричних і магнітних кристалів за своєю актуальністю, широтою та практичним значенням займає одне з центральних місць у фізиці конденсованого стану. Існує велике розмаїття такого типу сполук з різноманітною структурою і хімічним складом, тому велике значення мають розробка універсальних методів їх дослідження і розвиток загальних мікроскопічних уявлень, які дозволяють зрозуміти і пояснити їх властивості. З цієї точки зору значний інтерес представляє дослідження простих мікроскопічних моделей, яке дозволяє з'ясувати вплив безладу на магнітні (сегнетоелектричні) властивості кристалу, а також спінових ступенів вільності на розшарування чи впорядкування сплаву. Непорядковані моделі Ізінга та Мічуї, які досліджуються в роботі, знаходять застосування також у теорії надпровідності та для опису процесів упорядкування в інших середовищах (газах, рідинах, біологічних об'єктах), а методи, які розвиваються для неупорядкованих систем, представляють інтерес у теоріях нейронних сіток і нелінійної оптимізації. Крім того, у багатьох випадках залишається відкритим питання про відповідність мікроскопічної моделі до конкретних матеріалів. Для однозначної відповіді на це питання необхідно коректно врахувати різні типи взаємодій в цих об'єктах і порівняти з результатами теорії широкий набір експериментальних даних для них. Саме така програма реалізується в третьому та четвертому розділах дисертації, в яких досліджуються конкретні неупорядковані сегнетоактивні кристали на основі розвинутого у перших двох розділах загального підходу.

Дисертаційна робота виконана в Інституті фізики конденсованих систем НАН України згідно плану робіт по темі шифр 1.4.8.11 №0194022990 "Розробка мікроскопічної теорії релаксаційних явищ і термодинамічних властивостей неупорядкованих систем у кластерному підході".

**Мета роботи.** Вивчення термодинаміки, релаксаційної динаміки і кореляційних функцій неупорядкованих ізінгівських моделей. Опис на їх основі властивостей квазіодновимірних сегнетоелектриків з водневими зв'язками та сегнетоелектриків типу порядок-безпорядок з асиметричним потенціалом з двома мінімумами.

**Наукова новизна:** У роботі вперше запропоновано єдиний підхід для розрахунку термодинамічних і динамічних характеристик та кореляційних функцій неупорядкованих ізінгівських моделей. На основі методу кластерного розвинення (двочастинковий кластер) розраховано твірні функції моделей Ізінга та Міцуї з рівноважним і з нерівноважним типами безладу. Введення неоднорідних полів дозволяє отримати довільні кореляційні функції шляхом диференціювання твірної функції. Для парної і тернарної кореляційних функцій отримано рівняння типу Орнштейна-Церніке і знайдено їх розв'язок в  $\bar{q}$ -представленні.

Розглянуто узагальнення кінетичного рівняння Глаубера на випадок неупорядкованих моделей Ізінга та Міцуї. Для нього сформульовано наближення двочастинкового кластера, яке дозволяє отримати аналітичний вираз для динамічного парного корелятора, як функції хвильового вектора  $\bar{q}$ .

Неупорядковані моделі Ізінга та Міцуї вперше застосовано для опису термодинамічних і динамічних властивостей неупорядкованих сегнетоелектриків типу  $Cs(H_{1-x}D_x)_2PO_4$ ,  $Rs_{1-x}dRs_x$ ,  $RbH_{1-x}D_xSO_4$ .

**Практична і наукова цінність роботи.** У роботі сформульовано підхід, який дає змогу отримувати узгоджені результати для термодинамічних, кінетичних характеристик і кореляційних функцій неупорядкованих ґраткових моделей, що описуються квазіспіновими гамільтоніанами. Такі моделі застосовуються, наприклад, для опису твердих розчинів сегнетоелектриків типу порядок-безпорядок, магнітних сплавів, нейронних сіток, впливу домішок, перебігу хімічних реакцій, динаміки біологічних популяцій тощо. Отримані у роботі прості аналітичні вирази можуть бути використані для інтерпретації та аналізу експериментальних даних і прогнозування властивостей таких систем. Зокрема, в даній роботі на основі розвинутого підходу здійснено кількісний опис термодинамічних і динамічних характеристик ряду неупорядкованих квазіодновимірних сегнетоактивних кристалів типу порядок-безпорядок.

**На захист виносяться такі положення:**

1. Розроблений єдиний підхід для розрахунку термодинамічних характеристик, статичних і динамічних кореляційних функцій неупорядкованої моделі Ізінга для випадків рівноважного і нерівноважного безладу, який ґрунтується на двовузловому кластерному наближенні.

2. Отримання твірних функцій моделі Ізінга з рівноважним і з нерівноважним безладами, аналітичне і чисельне дослідження термодинамічних потенціалів, теплоємності, кореляційних функцій моделі на простих ґратках різної розмірності. Опис ряду ефектів, які не відтворюються у наближенні молекулярного поля:
  - існування максимуму на температурній залежності парного корелятора в парафазі у певному інтервалі хвильових векторів;
  - недонасичення моменту спіна і розбіжність сприйнятливості (як  $1/T$ ) при  $T \rightarrow 0$  у розведеній системі з нерівноважним безладом;
  - наявність впливу спин-спінової взаємодії на розшарування системи навіть у парафазі і вплив “необмінної” взаємодії на температуру Кюрі при рівноважному типі безладу.
3. Вивід кінетичного рівняння для середнього значення спіна в неупорядкованій моделі Ізінга на основі замикання ланцюжка кінетичних рівнянь Глаубера і усереднення по безладу в наближенні двочастинкового кластера. Розрахунок динамічної парної кореляційної функції для моделі Ізінга з рівноважним і з нерівноважним безладами. У кластерному наближенні релаксація є мультидисперсною, розподіл часів релаксації дискретний, число часів релаксації перевищує число сортів.
4. Кількісний опис на основі неупорядкованої моделі Ізінга термодинамічних і динамічних характеристик неупорядкованих квазіодновимірних сегнетоелектриків з водневими зв'язками типу  $Cs(H_{1-x}D_x)_2PO_4$  і передбачення існування тенденції до сортового впорядкування у  $Cs(H_{1-x}D_x)_2PO_4$ .
5. Розрахунок термодинамічних характеристик, статичних і динамічних кореляційних функцій неупорядкованих сегнетоелектриків з асиметричним двомінімумним потенціалом на основі неупорядкованої моделі Міцуї. Модель кількісно описує діелектричні властивості кристалів сегнетової солі, гідросульфату рубідію та їх дейтерованих аналогів.

**Апробація роботи.** Основні результати дисертації доповідались і обговорювались на таких симпозіумах та конференціях:

- Українсько-французький симпозіум “Конденсована речовина: наука та індустрія” (Львів, 1993р.);

- Польський і Східно-Європейський семінар по сегнетоелектриці і фазових переходах (Ужгород, В.Ремети, 1994)
- Міжнародна конференція по магнетизму (Варшава, 1994)
- Міжнародна конференція, присвячена 150-річчю від дня народження І.Пулюя (Львів, 1995р.);
- Міжнародна робоча нарада “Статистична фізика та теорія конденсованого стану” (Львів, 1995р.);
- VI Європейська конференція по магнітних матеріалах та їх застосуваннях (Відень, 1995)
- XXII Міжнародний семінар і III Польсько-Українська конференція по фізиці сегнетоелектриків (Кудова-Здрой, Польща, 1996)

а також на семінарах Інституту фізики конденсованих систем Національної академії наук України та на семінарах відділу теорії модельних спінових систем.

**Публікації.** За матеріалами дисертації опубліковано 14 робіт. У спільних публікаціях авторові належать виводи рівнянь типу Орнштейна-Церніке для кореляторів, аналітичні вирази для термодинамічних потенціалів і кореляційних функцій, числові розрахунки, порівняння отриманих результатів з експериментом. Обговорення та інтерпретація отриманих результатів дані ним спільно зі співавторами.

**Структура та об'єм дисертації.** Дисертаційна робота складається з вступу, чотирьох розділів, списку цитованої літератури та одного додатку. Кожен розділ дисертації починається з вступу, в якому проводиться більш детальний розгляд конкретної проблеми, і завершується висновками. Робота викладена на 105 сторінках (разом з літературою та додатком — 117 сторінок), включає бібліографічний список, що містить 126 найменувань у вітчизняних та зарубіжних виданнях.

## ЗМІСТ РОБОТИ

**Вступ.** Подано огляд робіт, в яких розвивалась теорія неупорядкованих ізінгівських систем, основних проблем, які вона повинна вирішити і явищ, що мають бути описані і пояснені. Розглянуто різні ефективно-польові підходи, їхні потенційні можливості та внутрішні обмеження. Висвітлено актуальність теми дисертаційної роботи, викладено короткий зміст кожного розділу, сформульовано основні положення, які виносяться на захист.

**Перший розділ** називається “Термодинаміка, релаксаційна динаміка і кореляційні функції моделі Ізінга з нерівноважним типом безладу”. У ньому розглянуто неупорядковану модель Ізінга, гамільтоніан якої описує систему спінів на вузлах простої ґратки, які взаємодіють з найближчими сусідами і з зовнішнім полем

$$H = - \sum_{(ij)} K_{ij} S_i S_j - \sum_i \kappa_i S_i,$$

причому  $S_i = \pm 1$  — оператор  $z$ -компоненти спіна на  $i$ -тому вузлі ( $i = 1 \dots N$ ). На кожному вузлі може знаходитись спін одного з  $\Omega$  сортів (задача вузлів) і сортова конфігурація описується операторами  $X_{i\alpha}$ :  $X_{i\alpha} = 1$ , якщо на вузлі  $i$  знаходиться квазіспін сорту  $\alpha$ , інакше  $X_{i\alpha} = 0$  ( $\alpha = 1 \dots \Omega$ ). Спіни різних сортів по-різному взаємодіють між собою і з полем:

$$\kappa_i = \sum_{\alpha} \kappa_{i\alpha} X_{i\alpha}; \quad K_{ij} = \sum_{\alpha\beta} K_{\alpha\beta} X_{i\alpha} X_{j\beta}.$$

У першому розділі розглядається випадок нерівноважного сортового безладу, коли сортова конфігурація зафіксована і термодинамічне середнє передбачає перебір тільки спінових конфігурацій ( $\text{Sp}_{\{S\}}$ )

$$\langle \dots \rangle_H = \text{Sp}_{\{S\}}(\dots) \frac{\exp(-H/\theta)}{Z}, \quad Z = \text{Sp}_{\{S\}} \exp(-H/\theta),$$

$\theta = k_B T$ . Для розрахунку спостережуваних величин необхідно виконати додатково усереднення по сортових конфігураціях

$$\langle \dots \rangle_x = \text{Sp}_{\{X\}} \rho(\{X\})(\dots).$$

Розподіл  $\rho(\{X\})$  визначається умовами приготування (замерзання) системи. Головну роль відіграють його найнижчі моменти: концентрація  $c_{\alpha} = \langle X_{i\alpha} \rangle_x$  сорту  $\alpha$  та імовірність  $w_{\alpha\beta} = \langle X_{i\alpha} X_{j\beta} \rangle_x$  знайти на вузлах-сусідах спіни сортів  $\alpha$  і  $\beta$ .

Для розрахунку термодинамічних характеристик і кореляційних функцій використовується метод, що ґрунтується на розрахунку твірної функції  $\langle F_x \rangle_x = \langle \ln Z \rangle_x$ , знаючи яку, можна розрахувати вільну енергію  $F = -\theta \langle F_x \rangle_x$  і корелятори моделі

$$m_{i_1 \alpha_1 \dots i_n \alpha_n}^{(n)} = \langle \langle S_{i_1 \alpha_1} \dots S_{i_n \alpha_n} \rangle_H \rangle_x = \theta^n \frac{\partial}{\partial \kappa_{i_1 \alpha_1}} \dots \frac{\partial}{\partial \kappa_{i_n \alpha_n}} \langle F_x \rangle_x,$$

де  $S_{i\alpha} = S_i X_{i\alpha}$ . На основі кластерного розвинення (двочастинковий кластер) у першому кластерному наближенні отримано

вираз для твірної функції моделі, який включає лише ефективні одновузлові і двовузлові внески

$$\langle F_x \rangle_x = (1-z) \sum_i \langle F_i \rangle_x + \sum_{(ij)} \langle F_{ij} \rangle_x,$$

де  $z$  — перше координаційне число ґратки,

$$F_i = \ln Z_i, \quad Z_i = \text{Sp}_{S_i} \exp(-H_i/\theta), \quad H_i = -\bar{\kappa}_i S_i,$$

$$\bar{\kappa}_i = \kappa_i + \sum_r r \bar{\varphi}_i, \quad r \bar{\varphi}_i = \sum_\alpha X_{i\alpha} r \bar{\varphi}_{i\alpha},$$

$$F_{ij} = \ln Z_{ij}, \quad Z_{ij} = \text{Sp}_{S_i S_j} \exp(-H_{ij}/\theta),$$

$$H_{ij} = -i \bar{\kappa}_j S_i - j \bar{\kappa}_i S_j - K_{ij} S_i S_j, \quad r \bar{\kappa}_i = \bar{\kappa}_i - r \bar{\varphi}_i.$$

Ефективні поля  $r \bar{\varphi}_{j\alpha}$  описують вплив вузла  $r$  на спін сорту  $\alpha$  на вузлі  $j$  і визначаються з умови екстремуму твірної функції, яка приводить до інтуїтивно зрозумілої умови самоузгодження

$$m_{i\alpha}^{(1)} = \langle \langle S_{i\alpha} \rangle_{H_i} \rangle_x = \langle \langle S_{i\alpha} \rangle_{H_{ij}} \rangle_x;$$

$$\langle \dots \rangle_{H_i} = \text{Sp}_{\{S\}}(\dots) \frac{\exp(-H_i/\theta)}{Z_i},$$

$$\langle \dots \rangle_{H_{ij}} = \text{Sp}_{\{S\}}(\dots) \frac{\exp(-H_{ij}/\theta)}{Z_{ij}}.$$

Середні  $\langle \dots \rangle_{H_i}$  і  $\langle \dots \rangle_{H_{ij}}$  обчислюються елементарно, бо містять обмежене число спінових і сортових операторів. У цих рівняннях вимагається рівність моменту спіна, обчисленого з одновузловою і кластерною матрицями густини. У випадку однорідного поля ( $\kappa_{i\alpha} = \kappa_\alpha$ ) такі співвідношення можна отримати також у квазіхімічному підході і у першому порядку методу варіації кластера, а перевага розвинутого у цьому розділі підходу полягає в неоднорідних полях  $\kappa_{i\alpha}$ , які дозволяють отримати довільні корелятори моделі шляхом диференціювання твірної функції. Так, беручи похідну від рівнянь самоузгодження і враховуючи функціональну залежність  $r \bar{\varphi}_{i\alpha}$  від полів  $\kappa$ , отримуємо рівняння типу Орнштейна-Церніке для парного корелятора, яке у випадку однорідного поля дає наступний вираз для Фур'є-образу парного корелятора  $(\hat{m}^{(2)})_{\alpha\beta} = \sum_j e^{iq(\vec{R}_i - \vec{R}_j)} m_{i\alpha j\beta}^{(2)}$

$$\begin{aligned} \left( \hat{m}^{(2)}(\vec{q}) \right)^{-1} &= (1-z)(F^{(2)})^{-1} + z \left( \hat{F}^{(20)} + \hat{F}^{(11)} \right)^{-1} \quad (*) \\ &+ (\pi_{\vec{0}} - \pi_{\vec{q}}) \left( \hat{F}^{(20)} \left( \hat{F}^{(11)} \right)^{-1} \hat{F}^{(20)} - \hat{F}^{(11)} \right)^{-1}, \end{aligned}$$

причому хвильовий вектор входить в цей вираз тільки через фактор  $\pi_{\vec{q}} = \sum_j e^{i\vec{q}(\vec{R}_i - \vec{R}_j)}$  (тут  $j$  — найближчі сусіди вузла  $i$ ), а матриці  $\hat{F}$  є кореляторами на одному вузлі і в межах кластера

$$\begin{aligned} \left(\hat{F}^{(2)}\right)_{\alpha\beta} &= \left\langle \langle S_{i\alpha} S_{i\beta} \rangle_{H_i} \right\rangle_x, \quad \left(\hat{F}^{(20)}\right)_{\alpha\beta} = \left\langle \langle S_{i\alpha} S_{i\beta} \rangle_{H_{ij}} \right\rangle_x, \\ \left(\hat{F}^{(11)}\right)_{\alpha\beta} &= \left\langle \langle S_{i\alpha} S_{j\beta} \rangle_{H_{ij}} \right\rangle_x. \end{aligned}$$

Для випадку одновимірної ґратки отримані результати є точними. Таким самим способом розраховано і тернарний корелятор моделі.

Дане наближення відтворює ряд явищ в розведеній системі ( $K_{11} = K$ ,  $K_{1\alpha} = 0$ ), що передбачаються також в деяких інших підходах і слідує з якісних міркувань, але не відтворюються в наближенні молекулярного поля: недонасичення моменту спіна ( $m_1^{(1)} < c_1$  при  $T = 0$ ), розбіжності сприйнятливості (але не корелятора) при  $T = 0$  ( $m_{11}^{(2)}(\vec{q})/T \xrightarrow{T \rightarrow 0} \infty$ ), зникнення фазового переходу при сильному розведенні (при  $(z-1)w_{11} < c_1$ ). Крім того, вперше спостережено такий ефект, що парний корелятор розведеної системи має максимум на температурній залежності при  $T > T_c$  в інтервалі хвильових векторів  $\pi_{\vec{q}} \in [0, \frac{z^2-z}{z^2-2z+2}]$ . Для ідеальної (нерозведеної) системи такий результат вже був отриманий у кластерному підході, а також на основі високотемпературних розвинень і ренормгрупових методів.

Запропоновано замикання кінетичного рівняння Глаубера для середнього значення спіна в дусі наближення двочастинкового кластера і отримано динамічну  $\vec{q}, \omega$ -залежну кореляційну функцію моделі у формі (\*), тільки у цьому випадку парціальні корелятори  $\hat{F}^{(2)}$ ,  $\hat{F}^{(xy)}$  залежать від частоти  $\omega$ . Точні результати для одновимірної односортої моделі та статичний корелятор є частинними випадками отриманої формули. Для багатосортої системи вона передбачає мультидисперсну релаксацію, при цьому число часів релаксації перевищує число сортів. Так, для розведеної системи (сорт 1 — магнітний, сорт 2 — не взаємодіючі домішки) динамічний корелятор складається з трьох дебайвських доданків

$$m_{11}^{(2)}(\vec{q}, \omega) = \frac{A_0}{1 + i\omega\tau_1^0} + \frac{A_+(\pi_{\vec{q}})}{1 + i\omega\tau_+(\pi_{\vec{q}})} + \frac{A_-(\pi_{\vec{q}})}{1 + i\omega\tau_-(\pi_{\vec{q}})}.$$

Перший доданок містить час релаксації невзаємодіючих між собою спінів  $\tau_1^0$  і не залежить від  $\vec{q}$ , а тому може бути пояснений внеском ізольованих спінів (тобто тих, всі сусіди яких є невзаємодіючими частинками сорту 2), часи релаксації  $\tau_+$  і  $\tau_-$  спадають при зменшенні  $\pi_{\vec{q}}$  (при віддаленні від центру зони Бріллюена).  $A_+$  занулюється у вершинах першої зони Бріллюена,  $A_-$ , навпаки, зникає в центрі зони Бріллюена. Тільки другий доданок володіє критичною поведінкою:  $A_+$  і  $\tau_+$  стають нескінченими при  $\vec{q} = 0, T \rightarrow T_c$ .

Другий розділ названо "Термодинамічні і динамічні властивості та кореляційні функції моделі Ізінга з рівноважним безладом". У випадку рівноважного безладу сортова конфігурація може змінюватись і за час спостереження (вимірювання) система встигає пройти велике число сортових конфігурацій.

Спостережувані величини знаходяться шляхом термодинамічного усереднення

$$\langle \dots \rangle_{\mathcal{H}} = \text{Sp}_{\{S, X\}}(\dots) \frac{\exp(-\mathcal{H}/\theta)}{\mathcal{Z}}, \quad \mathcal{Z} = \text{Sp}_{\{S, X\}} \exp(-\mathcal{H}/\theta),$$

яке передбачає перебір всіх спінових і сортових конфігурацій. У цьому випадку на властивості системи впливає також "необмінна", незалежна від спінів взаємодія  $V_{\alpha\beta}$ , яка теж включена в гамільтоніан,

$$\mathcal{H} = - \sum_{(ij)} K_{ij} S_i S_j - \sum_i \kappa_i S_i - \sum_{(ij)} V_{ij} - \sum_i \mu_i,$$

$$V_{ij} = \sum_{\alpha\beta} V_{\alpha\beta} X_{i\alpha} X_{j\beta}, \quad \mu_i = \sum_{\alpha} \mu_{i\alpha} X_{i\alpha},$$

величини  $\mu_{i\alpha}$  є хімічними потенціалами, які визначаються з умов  $c_{\alpha} = \langle X_{i\alpha} \rangle_{\mathcal{H}}$ .

Кластерне розвинення твірної функції  $\mathcal{F} = \ln \mathcal{Z}$  дало можливість у першому кластерному наближенні представити її у вигляді суми ефективних одночастинкових і кластерних внесків, які обчислюються елементарно. Диференціювання твірної функції по неоднорідних полях  $\kappa_{i\alpha}$ ,  $\mu_{i\alpha}$  дозволяє отримати спінові і сортові кореляційні функції моделі. Парну кореляційну функцію отримуємо у формі

$$\hat{m}^{(2)}(\vec{q}) = \hat{\mathcal{F}}^{(2)}(1 + (z-1)\hat{P}^2 - \pi_q \hat{P}),$$

де

$$\hat{m}^{(2)}(\vec{q}) = \sum_l e^{i\vec{q}(\vec{R}_j - \vec{R}_l)} \begin{pmatrix} \langle S_j S_l \rangle_{\mathcal{H}}^c & \langle S_j X_l \rangle_{\mathcal{H}}^c \\ \langle X_j S_l \rangle_{\mathcal{H}} & \langle X_j X_l \rangle_{\mathcal{H}} \end{pmatrix},$$

$$\hat{\mathcal{F}}^{(2)} = \begin{pmatrix} \langle S_i S_i \rangle_{\mathcal{H}_i}^c & \langle S_i X_i \rangle_{\mathcal{H}_i}^c \\ \langle X_i S_i \rangle_{\mathcal{H}_i} & \langle X_i X_i \rangle_{\mathcal{H}_i} \end{pmatrix},$$

$$\hat{P} = \left( \hat{\mathcal{F}}^{(2)} \right)^{-1} \begin{pmatrix} \langle S_i S_j \rangle_{\mathcal{H}_{ij}}^c & \langle S_i X_j \rangle_{\mathcal{H}_{ij}}^c \\ \langle X_i S_j \rangle_{\mathcal{H}_{ij}} & \langle X_i X_j \rangle_{\mathcal{H}_{ij}} \end{pmatrix},$$

$$\left( \langle S_i X_j \rangle_{\mathcal{H}_{ij}}^c \right)_{\alpha\beta} = \langle S_{i\alpha} X_{j\beta} \rangle_{\mathcal{H}_{ij}}^c.$$

У виразі для  $\hat{P}$  вузли  $i, j$  — найближчі сусіди. Як і у випадку нерівноважного безладу, кореляційна функція виражається через одновузловий корелятор і корелятор кластера — пари найближчих вузлів.

Виявляється, що у випадку рівноважного безладу парна кореляційна функція для певного інтервалу хвильових векторів теж (як і в системі з нерівноважним безладом) має максимум на  $T$ -залежності в парафазі.

Розраховано також тернарний корелятор моделі, який виразився через парціальні одновузлові і кластерні корелятори.

Збудовано фазові діаграми двосортної моделі, які показують взаємовплив спінових і сортових ступенів вільності. З'ясовано, що в двосортній системі якісно такий вплив визначається величинами  $\tilde{K} = K_{11} + K_{22} - 2K_{12}$  і  $\tilde{V} = V_{11} + V_{22} - 2V_{12}$ , які показують наскільки взаємодія спінів однакових сортів більша за взаємодію різносортних спінів. Додатні значення цих величин сприяють розшаруванню. Вплив  $\tilde{V}$  на температуру Кюрі  $T_c$  залежить від знаку  $\tilde{K}$ . Збільшення  $\tilde{V}$  приводить до того, що спіни різних сортів опиняються на сусідніх вузлах рідше:  $w_{12}$  зменшується, а  $w_{11}$ ,  $w_{22}$  ростуть ( $w_{\alpha\beta} = \langle X_{i\alpha} X_{j\beta} \rangle_{\mathcal{H}}$ ,  $i, j$  — найближчі сусіди). Це, в свою чергу, приводить до збільшення  $T_c$  при  $\tilde{K} > 0$  і зменшення  $T_c$  при  $\tilde{K} < 0$ .

Для опису динаміки системи потрібно розглянути зміну в часі не тільки спінової, але й сортової конфігурації. Ми, однак, прийmemo, що час релаксації сортової конфігурації значно більший за час спінової релаксації  $1/\nu_0$ . При цьому  $\nu_0$  — нижня межа діапа-

зону частот, в якому відбувається сегнетоелектрична чи магнітна дисперсія (порядку ІМГц), і яким ми будемо цікавитись. Тоді спіни “бачать” сортову конфігурацію незмінною, і це означає, що сортовий розподіл заморожений відносно швидких змін зовнішнього поля (але може змінюватись при повільній зміні температури чи статичного поля). Тому в області частот  $\nu > \nu_0$  динамічний спін-спіновий корелятор обох — рівноважної і нерівноважної — моделей дається одним і тим же виразом, який, однак, містить величину  $w_{\alpha\beta}$  — сортовий корелятор найближчих сусідів. Ця величина є різною в моделях з рівноважним і з нерівноважним безладом: у випадку нерівноважного безладу це константа, визначена при замерзанні системи, а у рівноважній моделі  $w_{\alpha\beta}$  визначається в рамках статичної теорії

$$w_{\alpha\beta} = \langle X_{i\alpha} X_{j\beta} \rangle_{H_{ij}}$$

У результаті динамічний корелятор моделі з рівноважним безладом відрізняється від корелятора нерівноважної моделі через відмінності у сортовому розподілі, який змінюється при зміні температури (бо на експерименті  $T$  мінюється зі швидкістю не більше 1К на хвилину) і статичної компоненти зовнішнього поля.

**Третій розділ** дисертації називається “Статистична теорія невпорядкованих квазіодновимірних сегнетоелектриків з водневими зв’язками”. На основі невпорядкованої моделі Ізінга розглядаються термодинамічні і динамічні характеристики сегнетоактивних кристалів з водневими зв’язками  $Cs(H_{1-x}D_x)_2PO_4$  (CDP) і  $PbH_{1-x}D_xPO_4$  (LHP). Завдяки квазіодновимірній структурі цих кристалів для них є природним наближення двочастинкового кластера по короткосяжних ланцюжкових взаємодіях з врахуванням далекоюсяжних взаємодій у наближенні молекулярного поля. У такому наближенні розраховано термодинамічні характеристики та статичні і динамічні кореляційні функції моделі для випадків рівноважного і нерівноважного безладу. Отримані результати порівнюються з наявними експериментальними даними: спонтанною поляризацією, діелектричною проникністю і часом релаксації поляризації. Оскільки для LHP є дані лише при  $x = 0$  і  $x \approx 1$ , ми не можемо зробити якісь висновки про тип безладу в цьому кристалі. Показано тільки, що модель дає задовільний опис властивостей кристалів LHP без сортового хаосу. Експериментальні дані для невпорядкованого CDP теж досить обмежені: температурний хід теплоємності виміряний лише для  $x = 0$  і  $x \approx 1$ , невідомі діелектрична проникність і час релаксації в сегнетофа-

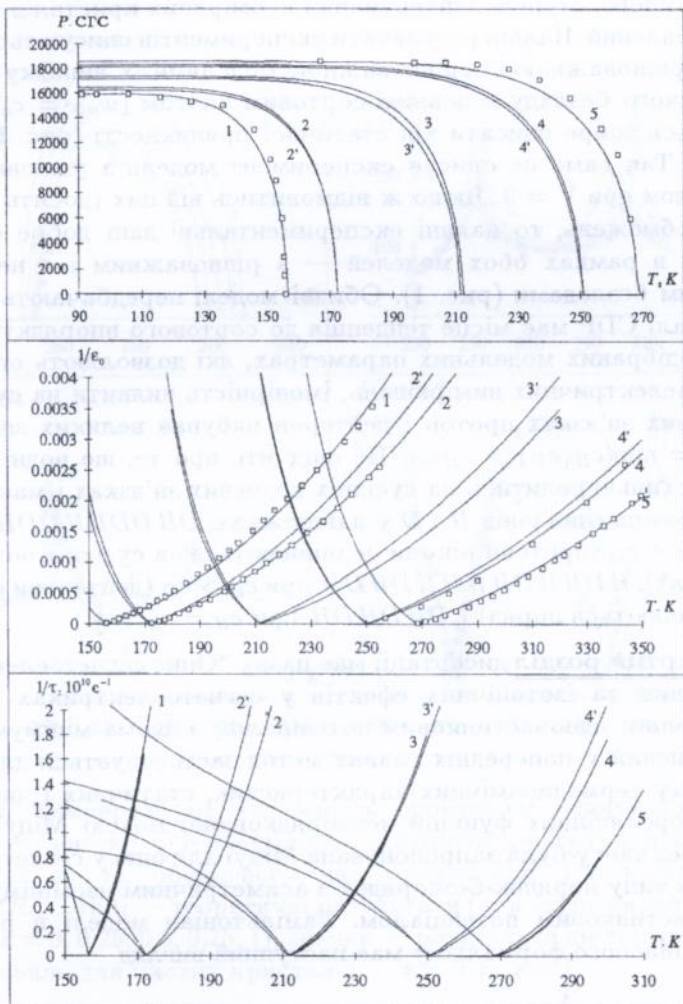


Рис. 1: Спонтанна поляризація  $P$ , обернена статична діелектрична проникність  $1/\epsilon_0$  та обернений час релаксації  $1/\tau$  сегнетоелектрика  $Cs(H_{1-x}D_x)_2PO_4$  при різних ступенях дейтерування. Квадрати відповідають експериментальним даним, жирні лінії на нижньому рисунку сполучають експериментальні точки. Тонкі лінії — теоретичні результати. При умові повного сортового хаосу:  $w_{\alpha\beta} = c_\alpha c_\beta$  (лінії 2', 3', 4') не вдається добре відтворити експериментальний хід  $1/\epsilon_0$ . Теорія узгоджується з експериментом, якщо прийняти великі значення  $w_{12}$  (лінії 1-5).

зі, крім того, ступінь дейтерування промірних кристалів не був встановлений. Наявні результати експериментів описуються обома — рівноважною і нерівноважною моделями. У випадку нерівноважного безладу з повним сортовим хаосом ( $w_{\alpha\beta} = c_{\alpha}c_{\beta}$ ) не вдається добре описати хід статичної проникності (рис. 1, лінії 2'-4'). Так само не описує експеримент модель з рівноважним безладом при  $\tilde{V} = 0$ . Якщо ж відмовитись від цих (досить штучних) обмежень, то наявні експериментальні дані добре описуються в рамках обох моделей — з рівноважним і з нерівноважним безладами (рис. 1). Обидві моделі передбачають, що в кристалі CDP має місце тенденція до сортового впорядкування: при підібраних модельних параметрах, які дозволяють описати дані діелектричних вимірювань, імовірність виявити на сусідніх водневих зв'язках протон і дейтерон набуває великих значень:  $w_{HD} = \min(c_H, c_D) > c_H c_D$ . Це свідчить про те, що водні і дейтерії схильні селитись на сусідніх водневих зв'язках і має місце таке розміщення іонів  $H$  і  $D$  у ланцюжках:  $DHDDDDHDDHDD$  при  $c_H < c_D$  (протони ніколи не опиняються на сусідніх водневих зв'язках),  $HDHDDHDDHDDHDDH$  при  $c_H > c_D$  (дейтерони ніколи не опиняються поряд) і  $DHDHDDH$  при  $c_H = c_D = \frac{1}{2}$ .

**Четвертий розділ** дисертації має назву "Опис сегнетоелектричних явищ та ізотопічних ефектів у сегнетоелектриках з асиметричним одночастинковим потенціалом з двома мінімумами". Розвинений у попередніх главах метод застосовується для розрахунку термодинамічних характеристик, статичних і динамічних кореляційних функцій невпорядкованої моделі Міцуї. Модель без хаосу була запропонована Міцуї для опису сегнетоелектриків типу порядок-безпорядок з асиметричним двомінімумним одночастинковим потенціалом. Гамільтоніан моделі в рамках квазіспінового формалізму має наступний вигляд

$$H = -\frac{1}{2} \sum_{\substack{ij \\ ab}} J_{\frac{1}{2} \frac{1}{2}} S_{\frac{1}{2} a} S_{\frac{1}{2} b} - \sum_{ia} \Gamma_{\frac{1}{2}} S_{\frac{1}{2} a} \\ - \sum_i (\Delta_{\frac{1}{2}} S_{\frac{1}{2}} - \Delta_{\pm} S_{\pm}) - \frac{1}{2} \sum_{\substack{ij \\ ab}} J_{\frac{1}{2} \frac{1}{2}}$$

і описує систему спінів на двох підгратках з внутрішнім полем  $\Delta_{\frac{1}{2}}$  ( $i = 1 \dots N$  — індекс елементарної комірки,  $a = \pm$  — індекс підгратки), яке в протилежно напрямлених у різних підгратках і описує асиметрію одночастинкового потенціалу. Величини  $J_{\frac{1}{2} \frac{1}{2}}$ ,

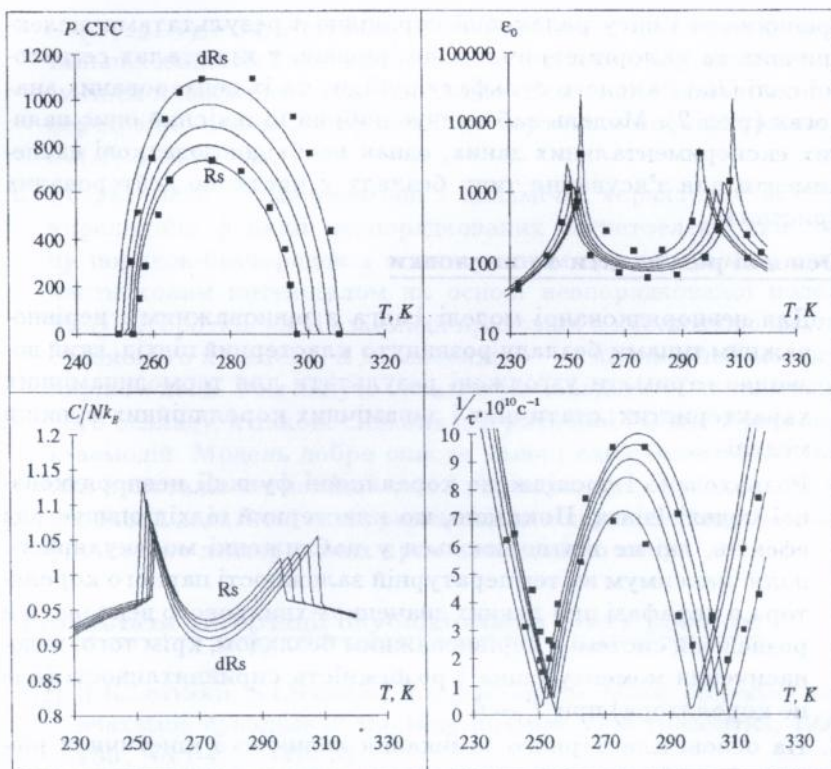


Рис. 2: Температурна залежність спонтанної поляризації  $P$ , спінового внеску в теплоємність, статичної діелектричної проникності  $\epsilon_0$  та оберненого часу релаксації  $1/\tau$  кристалів  $Rs_{1-x}dRs_x$ . Лінії — теоретичні результати (для ступенів дейтерування  $x = 0, 0.25, 0.5, 0.75, 1$ ), значки — результати діелектричних вимірювань для чистих кристалів —  $x = 0$  та  $x = 1$ .

$I_{\frac{i}{a} \frac{j}{b}}$ ,  $\Gamma_{\frac{i}{a}}$ ,  $\Delta_{\frac{i}{a}}$  залежать від сортової конфігурації. Для випадків рівноважного і нерівноважного безладу розраховано термодинамічні характеристики, статичні і динамічні кореляційні функції моделі в наближенні двочастинкового кластера по короткосяжній взаємодії з врахуванням далекодії в наближенні молекулярного поля. Розвинуто два варіанти кластерного підходу, в яких підграткова або ж міжпідграткова короткосяжна взаємодія враховується в наближенні двочастинкового кластера. Результати розрахунку спонтанної поляризації, теплоємності, діелектричної

проникності і часу релаксації порівняно з результатами діелектричних та калориметричних вимірювань у кристалах сегнетової солі ( $Rs$ ) і кислого сульфату рубідію та їх дейтерованих аналогах (рис. 2). Модель забезпечує добрий кількісний опис наявних експериментальних даних, однак необхідні додаткові експерименти для з'ясування типу безладу у частково дейтерованих кристалах.

### Основні результати та висновки

1. Для неупорядкованої моделі Ізінга з рівноважним і нерівноважним типами безладу розвинуто кластерний підхід, який дозволяє отримати узгоджені результати для термодинамічних характеристик, статичних і динамічних кореляційних функцій моделі.
2. Розраховано і досліджено кореляційні функції неупорядкованої моделі Ізінга. Показано, що кластерний підхід описує ряд ефектів, які не відтворюються у наближенні молекулярного поля: максимум на температурній залежності парного корелятора в парафазі при певних значеннях хвильового вектора, а в розведеній системі з нерівноважним безладом, крім того, недонасичення моменту спіна і розбіжність сприйнятливості (але не корелятора) при  $T \rightarrow 0$ .
3. На основі кластерного замикання ланцюжка кінетичних рівнянь Глаубера розраховано  $\bar{q}, \omega$ -залежну парну динамічну кореляційну функцію неупорядкованої моделі Ізінга. У багатосортній системі спостерігається мультидисперсна релаксація. В рамках кластерного наближення розподіл часів релаксації дискретний, число часів релаксації перевищує число сортів.
4. Досліджено взаємовплив спінового і сортового впорядкування у моделі Ізінга з рівноважним сортовим безладом. Показано, що в кластерному підході, на відміну від наближення молекулярного поля, спін-спінова взаємодія може сприяти чи протидіяти розшаруванню системи навіть в парафазі, а "необмінна" взаємодія впливає на температуру Кюрі.
5. У наближенні двочастинкового кластера по короткосяжних взаємодіях з врахуванням далекосяжних взаємодій у наближенні молекулярного поля розраховано термодинамічні характеристики, статичні і динамічні кореляційні функції неупорядкованої моделі Ізінга для випадків рівноважного і нерівноважного безладу. Показано, що ця модель добре описує результати діелектричних вимірювань у сегнетоелектриках

$Cs(H_{1-x}D_x)_2PO_4$ ,  $PbHPO_4$ ,  $PbDPO_4$ . Через брак експериментальних даних не вдається встановити тип безладу, який реалізується в цих кристалах, проте для обох типів безладу теорія передбачає наявність тенденції до сортового впорядкування в  $Cs(H_{1-x}D_x)_2PO_4$ .

6. Розраховано термодинамічні і динамічні характеристики та кореляційні функції неупорядкованих сегнетоелектриків типу порядок-безпорядок з асиметричним двоінімумним одночастинковим потенціалом на основі неупорядкованої моделі Міцуї. Короткосяжні взаємодії враховані в наближенні двочастинкового кластера, а далекосяжні — у наближенні молекулярного поля. Розглянуто випадки рівноважного і нерівноважного безладу, а також сильних підграткової і міжпідграткової взаємодій. Модель добре описує наявні експериментальні дані для кристалів сегнетової солі і гідросульфату рубідію, однак необхідні додаткові експерименти для з'ясування типу безладу у частково дейтерованих кристалах даного типу.

#### Результати дисертації опубліковано в таких роботах:

- [1] R.R.Levitskii, S.I.Sorokov, R.O.Sokolovskii. Static properties and relaxation dynamics of the Ising mixture. // *Ferroelectrics*, 1994, **153**, No 1-4, p. 147-152.
- [2] R.R.Levitskii, S.I.Sorokov, R.O.Sokolovskii. Correlation functions of quenched and annealed Ising systems. // *Cond. Matt. Phys.*, 1995, No 5, p. 81-104.
- [3] R.R.Levitskii, S.I.Sorokov, R.O.Sokolovskii. Relaxation dynamics and thermodynamics of disordered Ising model: Two-particle cluster approximation. // *JMMM*, 1995, No 140-144, p. 271-272.
- [4] R.R.Levitskii, S.I.Sorokov, R.O.Sokolovskii. Relaxation dynamics of disordered Ising model. Two-site cluster approximation. // *Cond. Matt. Phys.*, 1996, No 7, p. 117-132.
- [5] Р.Р.Левицький, С.І.Сороков, Р.О.Соколовський. Невпорядкована модель Ізінга з нерівноважним безладом у наближенні двочастинкового кластера. // *Журнал фізичних досліджень*, 1996, **1**, №1, с. 70-89.
- [6] R.R.Levitskii, S.I.Sorokov, R.O.Sokolovskii. Quenched Ising model within two-site cluster approximation. // *Ferroelectrics*, 1997, **192**, No 1-4, p. 11-19.
- [7] Р.Р.Левицький, С.І.Сороков, Р.О.Соколовський. Термодинаміка і релаксаційна динаміка неупорядкованої моделі Ізін-

га. Наближення двочастинкового кластера. / Препринт АН України, ІФКС-93-17У, 43с.

- [8] R.R.Levitskii, S.I.Sorokov, R.O.Sokolovskii. Correlation functions of disordered Ising model in two-site cluster approximations. 1. Quenched system. / Preprint of the National Academy of Sciences of Ukraine, ICMP-94-4E, 32p.
- [9] R.R.Levitskii, R.O.Sokolovskii, S.I.Sorokov. Thermodynamics and relaxational dynamics of disordered quasi-one-dimensional ferroelectrics with hydrogen bonds. / Preprint of the National Academy of Sciences of Ukraine, ICMP-97-9E, 31p.
- [10] Р.О.Соколовський. Термодинаміка, кореляційні функції і релаксаційна динаміка невідпорядкованих сегнетоактивних кристалів з асиметричним одночастинковим потенціалом з двома мінімумами. / Препринт НАН України, ICMP-97-10U, 23с.
- [11] R.R.Levitskii, S.I.Sorokov, R.O.Sokolovskii. Relaxation dynamics and thermodynamics of disordered quasi-one-dimensional ferroelectrics with hydrogen bonds. // In: "Abstracts of the Ukrainian - Polish and East-European workshop on ferroelectricity and phase transitions. Uzhgorod - V.Remety, Ukraine, September 18-24, 1994", p. 7.
- [12] R.R.Levitskii, S.I.Sorokov, R.O.Sokolovskii. Quenched and annealed Ising systems in cluster approach. // In: "6th European magnetic materials and application conference. Wien, Austria, September 4-8, 1995. Programme and abstracts", p. 246.
- [13] R.R.Levitskii, S.I.Sorokov, R.O.Sokolovskii. Equilibrium and nonequilibrium disorder in partially deuterated ferroelectrics. // In: "International workshop on statistical physics and condensed matter theory. Sept.11-14, 1995, Lviv, Ukraine. Programme and abstracts", p. 44.
- [14] R.O.Sokolovskii, I.V.Kutny. Dynamics and thermodynamics of ferroelectrics with asymmetric hydrogen bonds. // В збірнику: "Міжнародна наукова конференція присвячена 150-річчю від дня народження видатного українського фізика і електротехніка Івана Пулюя. Тези доповідей. (Львів, 23-26 травня 1995 року)", с.101.

## **Sokolovskii R. O. Investigation of disordered Ising models with cluster approach.**

*Thesis on search of the scientific degree of candidate of physical and mathematical sciences, speciality 01.04.02 – theoretical physics. Institute for Condensed Matter Physics of the Ukrainian National Academy of Sciences, Lviv, 1997.*

14 scientific papers, which present the results of theoretical study of the thermodynamic properties, relaxation dynamics and correlation functions of the disordered spin systems, are being defended. Both quenched and annealed systems are considered. Within the two-site cluster approximation the method for calculation of the static and dynamic correlation functions in such systems is developed. The effect of the disorder on the magnetic (ferroelectric) properties is considered and the effect of the spin-spin correlations on the alloy separation are studied. On the basis of the disordered Ising and Mitsui models the results of the dielectric measurements in the ferroelectric crystals  $CsH_2PO_4$ ,  $PbHPO_4$ ,  $NaKC_4H_4O_6 \cdot 4H_2O$  and  $RbHSO_4$  as well as the isotopic effects in them are described.

## **Соколовский Р.О. Исследование неупорядоченных изинговских моделей в кластерном приближении**

*Диссертация на соискание учёной степени кандидата физико-математических наук по специальности 01.04.02 – теоретическая физика. Институт физики конденсированных систем Национальной академии наук Украины, Львов, 1997.*

Защищается 14 научных работ, которые содержат результаты теоретического исследования термодинамических свойств, релаксационной динамики и корреляционных функций неупорядоченных спиновых систем с равновесным и неравновесным сортовым беспорядком. В приближении двухчастичного кластера предложен метод расчета статических и динамических корреляционных функций для таких систем. Изучено влияние беспорядка на спиновые (магнитные, сегнетоэлектрические) свойства, а в случае равновесного беспорядка — обратный эффект влияния спин-спиновых взаимодействий на расслоение сплава. На основании неупорядоченных моделей Изинга и Мицуи получено хорошее описание результатов диэлектрических измерений в сегнетоэлектрических кристаллах  $CsH_2PO_4$ ,  $PbHPO_4$ ,  $NaKC_4H_4O_6 \cdot 4H_2O$ ,  $RbHSO_4$  и изотопических эффектов в них.

**Ключові слова:** неупорядкована модель Ізінга, кореляційні функції, релаксаційна динаміка, рівноважний і нерівноважний типи безладу, сегнетоелектрики типу порядок-безпорядок.

**АВ 37.866**

Підписано до друку 12.5.97. Формат 60x84/16.  
Друк офсетний. Ум. друк. арк. 1,0. Тираж 100. Зам. 6021.  
Друк ПТУ №58 290008, Львів, вул. Ів. Федорова, 9.