

ОБЪЕДИНЕННЫЙ ИНСТИТУТ ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ

Л 87
на правах рукописи

ЛУЧИНСКАЯ ЕЛЕНА АРКАДЬЕВНА

УДК 548:537.621; 537.611.44
536.75

ОРИЕНТАЦИОННОЕ УПОРЯДОЧЕНИЕ
В КВАДРУПОЛЬНЫХ СИСТЕМАХ СО СЛУЧАЙНЫМИ СВЯЗЯМИ

01.04.02 - теоретическая и математическая физика

Автореферат
диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Дубна 1989

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Работа выполнена в Институте физики высоких давлений
АН СССР им. Л.Ф.Верецагина.

Научный руководитель:
доктор физико-математических наук,
старший научный сотрудник

Е.Е.Тареева.

Официальные оппоненты:

академик АН МССР, доктор физико-
математических наук, профессор

В.А.Москаленко,

доктор физико-математических наук,
старший научный сотрудник

В.Б.Приезжев,

Ведущая организация:

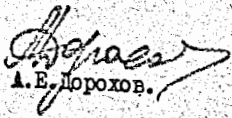
Математический институт им. В.А.Стеклова АН СССР, Москва.

Защита диссертации состоится "17" мая 1989 г.
в 16 ч. на заседании Специализированного ученого совета
К-047.01.01 Лаборатории теоретической физики Объединенного
института ядерных исследований, г.Дубна Московской области.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке СИБИ.

Автореферат разослан "11" апреля 1989 г.

Ученый секретарь совета
кандидат физико-математических наук


А.Е.Дорохов.

Актуальность темы. Исследование случайных неупорядоченных термодинамических систем является одним из новых перспективных направлений в статистической физике. В настоящее время большой интерес вызывает изучение случайных квадрупольных систем, что обусловлено, в основном, двумя причинами.

Во-первых, в последние десятилетия сложилась целая область статистической физики, которая изучает случайные спиновые системы, в частности, магнитные сплавы. Эти системы проявляют ряд интересных свойств, как например, переход в состояние спинового стекла при низких температурах и малых концентрациях магнитных примесей. Естественным шагом в развитии этого направления является исследование более сложных систем, в частности, случайных квадрупольных систем.

Второй причиной, вызвавшей интерес к теоретическому исследованию случайных квадрупольных систем, является интенсивное экспериментальное изучение таких веществ, как молекулярные кристаллические смеси орто-параводорода, орто-парадейтерия, азота-аргона, которые как раз и являются случайными квадрупольными системами. Известно, что при концентрациях молекул, обладающих электрическим квадрупольным моментом, выше критической в системе происходит фазовый переход первого рода из неупорядоченного состояния в упорядоченное состояние с дальним порядком, подобно магнитному упорядочению в спиновых системах. Этот ориентационный переход сопровождается структурным переходом из г.п.у. решетки в г.ц.к. решетку. При концентрациях молекул ниже критического значения указанный ориентационный переход отсутствует. Эта область концентраций и стала объектом интенсивных исследований. К моменту начала работы над темой диссертации был накоплен богатый экспериментальный материал, который трактовался неоднозначно, а теория ориентационного упорядочения в таких системах полностью отсутствовала.

Цель работы состоит, во-первых, в теоретическом исследовании ориентационного упорядочения в случайных квадрупольных системах при низких температурах и концентрациях молекул, обладающих электрическим квадрупольным моментом, ниже крити-

ческой, и, во-вторых, в объяснении имеющихся экспериментальных данных для молекулярных кристаллических смесей орто-параводорода, орто-парадейтерия, азота-аргона.

Научная новизна и практическая ценность работы состоит в том, что впервые предложен последовательный теоретический модельный подход для описания ориентационного упорядочения в случайных квадрупольных системах. В рамках предложенного подхода получены выражение для свободной энергии и уравнения для параметров порядка для аксиальной и неаксиальной случайных квадрупольных систем.

Решение нелинейных уравнений для параметров порядка для случая аксиальной случайной квадрупольной системы говорит о плавном нарастании параметров порядка при понижении температуры и об отсутствии резкого фазового перехода в фазу квадрупольного стекла, что связано с наличием в разбавленных квадрупольных системах внутренних полей, которые не исчезают даже при высоких температурах. Эти результаты хорошо согласуются с новейшими экспериментальными данными.

Проведено исследование поведения параметров порядка и энтропии в области низких температур. Изучен ход теплоемкости. Показано, что теплоемкость имеет широкий максимум при конечной температуре. Полученный результат также подтверждается экспериментальными данными.

Показано, что в случайной системе неаксиальных квадрупольных имеет место аксиальный порядок даже при отсутствии аксиального взаимодействия в исходном гамильтониане. Установлено, что в случайной системе неаксиальных квадрупольных будет иметь место резкий фазовый переход в фазу квадрупольного стекла, если будут совпадать параметры распределений констант связи аксиального и неаксиального взаимодействий. Такая ситуация возможна в случае г.ц.к. решетки.

Исследовано влияние выбора распределения констант связи на возможность фазового перехода в случайной системе аксиальных квадрупольных. Показано, что в такой системе отсутствует фаза с чистым упорядочением типа стекла. По-видимому, плавный рост параметров порядка и отсутствие резкого фазового перехода определяются самим квадрупольным взаимодействием, а не конкретным видом распределения констант связи.

Апробация работы. Результаты докладывались на III и IV Международных симпозиумах по избранным проблемам статистической механики /Дубна, 1984, 1987 гг./, в ИАЭ им. И.В. Курчатова /Москва, 1984 г./, на семинаре "Структурные стекла" в ЛФФ ОИИИ /Дубна, 1987 г./, на конференциях молодых ученых ИФВД АН СССР /Троицк, 1986, 1988 гг./, на научном семинаре в ЛФФ ОИИИ /Дубна, 1988 г./, на школе "Simple molecular systems at very high density" /Les Houches, 1988/.

Публикации. Основные результаты диссертации представлены в 7 публикациях.

Структура и объем работы. Диссертация состоит из введения, одной обзорной и трех оригинальных глав, заключения, двух приложений и списка цитируемой литературы, содержащего 107 наименований - всего 118 страниц машинописного текста, включая 12 рисунков.

СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во введении обоснована актуальность темы диссертационной работы, сформулирована цель работы, изложено содержание диссертации и приведены основные научные выводы.

В первой главе представлен обзор экспериментальных и теоретических работ по случайным квадрупольным системам, рассмотрены основные положения теории спинового стекла.

Изложены две точки зрения, которые сложились в результате первоначальных экспериментов по исследованию случайных квадрупольных систем. Первая из них состояла в том, что поскольку наличие полная аналогия случайных квадрупольных систем со случайными спиновыми системами, а именно наличие беспорядка замещения и фрустрации, то в случайных квадрупольных системах имеет место резкий переход в состояние квадрупольного стекла при определенной температуре $T_c(x) / x$ - концентрация молекул, обладающих электрическим квадрупольным моментом/, подобно переходу в состояние спинового стекла. При температуре ниже $T_c(x)$ ориентации квадрупольных в узлах решетки заморожены в произвольном направлении, и дальний порядок в системе отсут-

ствует. Вторая точка зрения состояла в том, что режим стекла нарастает постепенно при понижении температуры, и резкий фазовый переход отсутствует, что является следствием нарушения локальной симметрии в случайных квадрупольных системах даже при высоких температурах.

Поскольку последовательный теоретический подход к описанию ориентационного упорядочения в случайных квадрупольных системах отсутствовал, то за основу были взяты методы, разработанные для описания случайных спиновых систем. Из большого количества теоретических работ по спиновому стеклу в обзоре представлена та часть из них, которая имеет непосредственное отношение к данной работе. Изложена модель с бесконечным дальним действием Шеррингтона и Киркпатрика (ШК), в которой беспорядок замещения по узлам заменен на беспорядок по связям. Гамильтониан модели имеет вид:

$$H = -\frac{1}{2} \sum_{i,j} J_{ij} S_i S_j, \quad S_i = \pm 1, \quad (1)$$

константы связи J_{ij} распределены с вероятностью

$$P(J_{ij}) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}J} \exp\left[-\frac{(J_{ij}-J_0)^2}{2J^2}\right], \quad (2)$$

причем $J_0 = \tilde{J}_0/\sqrt{N}$, $J = \tilde{J}/N$.

Рассмотрен как репликосимметричный вариант решения этой модели, так и вариант с нарушением репличной симметрии.

Кратко изложены и другие подходы, применявшиеся к описанию ориентационного упорядочения в случайных спиновых системах.

В завершающей части обзора рассмотрены теоретические работы, появившиеся в последнее время и представляющие разные подходы к описанию случайных квадрупольных систем. В ряде из них развивается предложенный нами подход к описанию ориентационного упорядочения в квадрупольных системах со случайными связями.

Во второй главе на основе предложенного нами подхода рассмотрено ориентационное упорядочение в аксиальной квадрупольной системе со случайными связями.

В §1 изложен предложенный подход. Рассмотрена система аксиальных квадрупольей с гамильтонианом

$$H = -\frac{1}{2} \sum_{i,j} J_{ij} Q_i Q_j, \quad (3)$$

где Q_i — компонента квадрупольного момента:

$$Q_i = 3J_z^2 - 2, \quad J_z = 0, \pm 1,$$

а константы связи J_{ij} имеют бесконечный радиус действия и распределены с вероятностью

$$P(J_{ij}) = (\sqrt{2\pi}J)^{-1} \exp\left[-\frac{(J_{ij}-J_0)^2}{2J^2}\right], \quad (4)$$

$$J_0 = \tilde{J}_0/\sqrt{N}, \quad J = \tilde{J}/N.$$

В приближении симметричных реплик получено выражение для свободной энергии, усредненной по конфигурациям, а также уравнения для ферроквадрупольного параметра порядка $m = \langle\langle Q \rangle\rangle_T$ и параметра порядка фазы квадрупольного стекла $q = \langle\langle Q^2 \rangle\rangle_T$:

$$\frac{\langle F \rangle_T}{NkT} = -\frac{t^2}{4}(q+m-2)(q-m-2) + \frac{\tilde{J}_0 m}{2kT} - \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int dz e^{-z^2/2} \ln(2e^\theta + e^{-2\theta}), \quad (5)$$

$$q = 4 \int \frac{dz}{\sqrt{2\pi}} e^{-z^2/2} \left[\frac{e^\theta - e^{-2\theta}}{2e^\theta + e^{-2\theta}} \right]^2, \quad (6)$$

$$m = 2 \int \frac{dz}{\sqrt{2\pi}} e^{-z^2/2} \left[\frac{e^\theta - e^{-2\theta}}{2e^\theta + e^{-2\theta}} \right], \quad (7)$$

где $\theta = t\sqrt{q}z + \frac{t^2}{2}(q+m-2) + \frac{\tilde{J}_0}{kT}m$, $t = \frac{\tilde{J}}{kT}$. (8)

Решение уравнений для параметров q и m представлено на рис. 1 для случая $\tilde{J}_0 = 0$. Из численного решения уравнений (6, 7) следует, что параметры порядка q и m плавно возрастают при понижении температуры, резкий фазовый

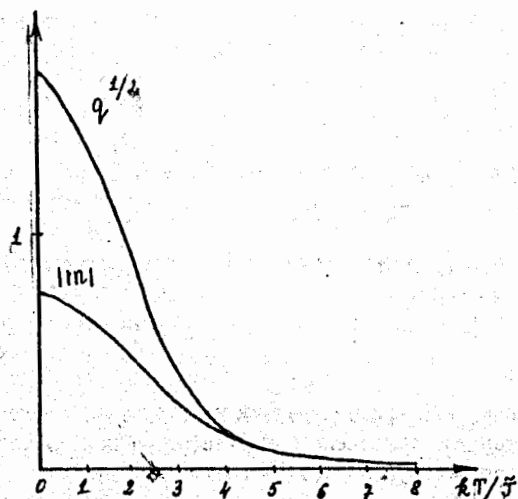


Рис. 1

переход отсутствует, и система характеризуется дождю наличием смешанной фазы с q и m , отличными от нуля. Этот результат является важным, поскольку он однозначно поддерживает вторую из указанных точек зрения на процесс ориентационного упорядочения в таких системах. Следует заметить, что в настоящее время мнения о плавном нарастании режима стекла при понижении температуры и отсутствии резкого фазового перехода придерживается большинство экспериментаторов.

В §2 исследовано поведение параметров порядка q и m в области низких температур для случая $\tilde{J}_0 = 0$.

В §3 получено выражение для энтропии и вычислено ее значение при нуле температуры. В отличие от модели ШК, где значение энтропии при $T = 0$ отрицательно и является нефизическим результатом, в нашем случае $S_0/N = 0,164 k$.

В §4 вычислены выражения для внутренней энергии и теплоемкости. Зависимость теплоемкости от температуры имеет характерный широкий максимум при конечной температуре / рис. 2 /, что подтверждается экспериментальными данными. Показано, что в области низких температур теплоемкость линейно стремится к нулю.

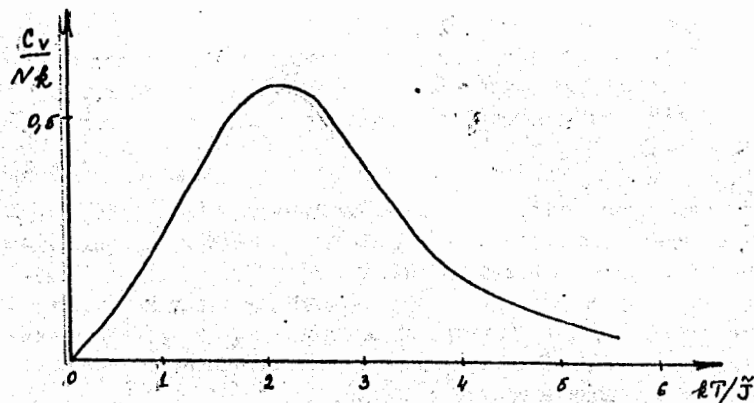


Рис. 2

В §5 результаты обобщаются для случая $\tilde{J}_0 \neq 0$. Показано, что отсутствие у рассматриваемой нами квадрупольной системы со случайными связями полностью неупорядоченной фазы / $q = 0, m = 0$ / связано с наличием в системе при любой температуре внутренних полей, которые описываются выражением $(k^2/2)(q+m-2)$ в формуле (8). Эти поля возникают из-за алгебры квадрупольных операторов, в которой $Q^2 = 2 - Q$. Заметим, что в модели ШК $S^2 = 1$.

В третьей главе рассмотрена более реалистическая модель, которая учитывает также неаксиальное взаимодействие между квадрупольными. Гамильтониан модели с бесконечным дальним взаимодействием имеет вид:

$$H = -\frac{1}{2} \sum_{i,j} J_{ij} Q_i Q_j - \frac{1}{2} \sum_{i,j} G_{ij} \tilde{v}_i \tilde{v}_j, \quad (9)$$

где $Q = 3J_x^2 - 2$, $\tilde{v} = \sqrt{3}(J_x^2 - J_y^2)$, $J = 1$;

константы связи J_{ij} и G_{ij} распределены с вероятностями

$$P(J_{ij}) = (\sqrt{2\pi} J)^{-1} \exp[-(J_{ij} - J_0)^2 / 2J^2], \quad (10)$$

$$P(G_{ij}) = (\sqrt{2\pi} G)^{-1} \exp[-(G_{ij} - G_0)^2 / 2G^2]; \quad (11)$$

$$J_0 = \tilde{J}_0 / \sqrt{N}, \quad J = \tilde{J} / N, \quad G_0 = \tilde{G}_0 / \sqrt{N}, \quad G = \tilde{G} / N.$$

В данном случае $Q^2 = 2 - Q$, $V^2 = 2 + Q$.

В §1 на основе репликосимметричного подхода вычислена свободная энергия такой модели, усредненная по конфигурациям, и получены уравнения для параметров порядка: аксиальных $m_1 = \langle\langle Q \rangle\rangle_{T, \xi}$, $q_1 = \langle\langle Q^2 \rangle\rangle_{T, \xi}$ и неаксиальных $m_2 = \langle\langle V \rangle\rangle_{T, \xi}$, $q_2 = \langle\langle V^2 \rangle\rangle_{T, \xi}$.

Из высокотемпературного разложения для параметров порядка следует, что параметры m_2 и q_2 имеют при высоких температурах тривиальное значение, а m_1 и q_1 , вообще говоря, нет. Параметры m_1 и q_1 плавно нарастают при понижении температуры, а в случае параметров m_2 и q_2 из-за симметрии подынтегральной функции имеют место фазовые переходы, подобно ситуации в спиновом стекле.

Рассмотрен случай, когда включено только неаксиальное взаимодействие $\tilde{J}_o = \tilde{c}_o = 0$, $\tilde{J} = 0$. Показано, что даже в отсутствие в исходном гамильтониане аксиального взаимодействия в неаксиальной системе квадруполь со случайными связями имеет место аксиальный ориентационный порядок. Найдена температура $t_c^2 = 0,178$, где $t_c = \tilde{c}/kT$, ниже которой появляется нетривиальное решение $q_2 \neq 0$, $m_2^2 \neq q_1$.

В §2 рассмотрен "изотропный" случай, когда распределения констант связи аксиального и неаксиального взаимодействий $P(J_{ij})$ и $P(G_{ij})$ имеют одинаковые параметры: $\tilde{J}_o = \tilde{c}_o = 0$; $\tilde{J} = \tilde{c}$.

Из высокотемпературного разложения следует, что в этом случае параметры m_1 , q_1 , q_2 равны нулю при высоких температурах. Параметр $m_2 \equiv 0$ в силу симметрии подынтегральной функции. Из разложения в окрестности малых m_1 , q_1 , q_2 получено, что в системе может происходить резкий фазовый переход в фазу квадрупольного стекла с параметрами $m_1 = 0$, и $q_1 = q_2 \neq 0$ при температуре $t_c = 1/2$.

Указано предположение, что такая ситуация возможна на кубической решетке, когда операторы Q и V принадлежат одному неприводимому представлению. Возможно также, что наличие плавного возрастания m_1 без резкого фазового перехода является спецификой гексагональной структуры $\tilde{J} \neq \tilde{c}$, которую и имеют все наблюдаемые на сегодняшний день экспериментально случайные квадрупольные системы.

В четвертой главе рассмотрено влияние выбора распределения констант связи на возможность реализации резкого фазового

перехода в состояние квадрупольного стекла в системе аксиальных квадруполь со случайными связями.

В §1 на основе вариационного принципа Боголюбова методом аппроксимирующих гамильтонианов, который применялся к описанию спиновых стекол, в приближении симметричных реплик получено выражение для модельной свободной энергии, а также уравнения для вариационных параметров. Вариационные параметры η_i и ξ_i связаны с ферроквадрупольным параметром $m_i = \langle\langle Q_i \rangle\rangle_{\alpha\delta}$ и параметром порядка квадрупольного стекла $q_i = \langle\langle Q_i^2 \rangle\rangle_{\alpha\delta}$ следующим образом:

$$m_i = 2 \int d\theta_u \left[\frac{e^{diu} - e^{-2diu}}{2e^{diu} + e^{-2diu}} \right], \quad (I2)$$

$$q_i = 4 \int d\theta_u \left[\frac{e^{diu} - e^{-2diu}}{2e^{diu} + e^{-2diu}} \right]^2, \quad (I3)$$

где $d\theta_u = (2\pi)^{-1/2} \exp(-u^2/2) du$ - нормированная гауссовская мера, а $diu = \eta_i + \xi_i u$.

Показано, что в рассматриваемой системе в связи с симметрией подынтегральной функции в (I2) могут реализовываться следующие фазовые состояния:

- а/ параквадрупольная фаза: $m_i = 0$, $q_i = 0$ при $\eta_i = 0$, $\xi_i = 0$;
- б/ ферроквадрупольная фаза: $m_i \neq 0$, $q_i \neq 0$, $q_i = m_i^2$ при $\eta_i \neq 0$, $\xi_i = 0$;
- в/ смешанная фаза: $m_i \neq 0$, $q_i \neq 0$, $q_i \neq m_i^2$ при $\eta_i \neq 0$, $\xi_i \neq 0$.

Из вышеизложенного следует, что в системе аксиальных квадруполь со случайными связями отсутствует фаза с чистым упорядочением типа стекла $m_i = 0$, $q_i \neq 0$.

В §2 в качестве иллюстрации приведено решение системы уравнений для вариационных параметров для модели с гауссовым распределением констант связи. В этом случае выражение для свободной энергии и уравнения для параметров порядка полностью совпадают с полученными ранее в гл. II.

В §3 решение системы уравнений для вариационных параметров приведено для обобщенной модели с распределением констант связи вида:

$$P(J) = c\delta(J - J_0 - J_1) + (1-c)\delta(J - J_0 + J_2), \quad (14)$$

где $1/2 < c < 1$.

Данная модель, как и модель с гауссовым распределением констант связи, характеризуется наличием при любых температурах смешанного состояния с параметрами q_i и m , отличными от нуля. Высказано предположение, что существование в случайных системах аксиальных квадрупольных смешанного состояния определяется самим квадрупольным взаимодействием, а не конкретным видом распределения констант связи $P_{ij}(J_{ij})$.

В заключении сформулированы основные результаты диссертационной работы.

В настоящей работе предложены последовательный теоретический модельный подход для описания ориентационного упорядочения в квадрупольных системах со случайными связями, в рамках которого получены следующие результаты:

1. В модели аксиальных квадрупольных систем с бесконечным радиусом взаимодействия и гауссовым распределением констант связи получено выражение для свободной энергии, а также уравнения для параметров порядка. Из решения этих уравнений следует, что рассматриваемая система характеризуется наличием при любой температуре смешанного состояния с отличным от нуля ферроквадрупольным параметром порядка и параметром порядка стекла. Эти параметры плавно нарастают при понижении температуры, причем резкий фазовый переход отсутствует, что связано с наличием в разбавленных квадрупольных системах внутренних полей, которые не исчезают даже при высоких температурах. Данные результаты хорошо согласуются с экспериментальными результатами и численными расчетами.

2. Получено выражение для энтропии и оценено ее значение при нуле температуры. Положительность полученного значения имеет принципиальный физический смысл.

3. Показано, что теплоемкость рассматриваемой системы имеет характерный широкий максимум при конечной температуре, что подтверждается экспериментальными данными; в области низких температур теплоемкость линейно стремится к нулю.

4. Установлено, что в модели неаксиальных квадрупольных систем с бесконечным радиусом взаимодействия и гауссовым распределением констант связи имеют место фазовые переходы для неаксиальных па-

раметров порядка, аналогично ситуации в спиновом стекле, в то время как аксиальные параметры порядка плавно нарастают при уменьшении температуры.

5. Показано, что в случайной системе неаксиальных квадрупольных систем имеет место аксиальный ориентационный порядок даже в отсутствие аксиального взаимодействия в исходном гамильтониане.

6. Установлено, что аксиальный ориентационный порядок будет отсутствовать при высоких температурах, и в системе имеет место фазовый переход в фазу квадрупольного стекла, если будут совпадать параметры распределений констант связи аксиального и неаксиального взаимодействий. Высказано предположение, что такая ситуация возможна в случае г.ц.к. решеток, когда операторы Q и J принадлежат одному неприводимому представлению, а плавное нарастание ориентационного параметра порядка и отсутствие резкого фазового перехода являются спецификой г.п.у. структуры.

7. Рассмотрено влияние выбора распределения констант связи на характер ориентационного упорядочения в случайной системе аксиальных квадрупольных систем. Показано, что в системе отсутствует фазовый переход с чистым упорядочением типа стекла. На основе рассмотрения гауссовой модели и обобщенной фрустрационной модели высказано предположение, что наличие при любой температуре смешанной фазы и плавное нарастание параметров порядка при понижении температуры определяются самим квадрупольным взаимодействием, а не конкретным видом распределения констант связи.

В приложении I рассмотрена чистая квадрупольная система с аксиальным взаимодействием бесконечного радиуса действия, в которой при $4t = 0,92 / t = J/kT$ происходит фазовый переход первого рода в ориентационно упорядоченную фазу с дальним порядком. Этот переход не сохраняется в разбавленных квадрупольных системах.

В приложении II рассмотрена возможность реализации состояния квадрупольного стекла под давлением в параводороде /ортодейтерий/, когда молекулы переходят из состояния $J_{\parallel} = 0$ в состояние $J_{\parallel} = 2$.

ПУБЛИКАЦИИ

1. Lutchinskaia E.A., Ryzhov V.N., Taroyeva E.E. Solvable model of a quadrupolar glass // J.Phys.C. 1984. Vol.17, N.26. P.1665-1667.
2. Лучинская Е.А., Рызов В.Н., Тареева Е.Е. Решаемая модель квадрупольного стекла // Труды III Международного симпозиума по избранным проблемам статистической механики. Дубна, 1984. Т.2. С.36-39.
3. Лучинская Е.А. Модель квадрупольного стекла с произвольным распределением констант связи // ТМФ. 1986. Т. 67, № 2. С. 314-320.
4. Лучинская Е.А., Рызов В.Н., Тареева Е.Е. Решаемая модель квадрупольного стекла с аксиальным взаимодействием // ТМФ. 1986. Т. 67, № 3. С. 463-469.
5. Лучинская Е.А., Тареева Е.Е. Модель квадрупольного стекла с неаксиальным взаимодействием // ТМФ. 1987. Т. 70, № 3. С. 477-479.
6. Лучинская Е.А., Рызов В.Н., Тареева Е.Е. К теории квадрупольных стекол // Тез. докл. IV Международного симпозиума по избранным проблемам статистической механики. Дубна, 1987. С. 54.
7. Лучинская Е.А., Тареева Е.Е. К теории фазы высокого давления в твердом параводороде // Сб. научных трудов "Действие высоких давлений на материалы". Киев: Наукова Думка. 1986. С. 21-24.

Е. Лучинская

Подл. в печать 15.03.89 Т-02724. Формат набора 60x84 1/16
Объем 0,75 п.л. Зак. 15/У. Тир. 100

Полиграфическое объединение "Печатник" Управздата Мсггорисполкома
ул.Н.Краснохолмская, 5