Письма в ЖЭТФ, том 32, вып. 1, стр. 51 – 56 *5 июля 1980 г.*

КОНЦЕНТРАЦИОННОЕ РАЗЛОЖЕНИЕ В ТЕОРИИ МИГРАЦИИ ВОЗБУЖДЕНИЯ ПО НЕУПОРЯДОЧЕННОЙ РЕШЕТКЕ

Ф.С.Джепаров, В.С.Смелов, В.Е.Шестопал

Построено точное разложение функции Грина по концентрации. Оно применено для описания кросс-релаксации β-активных ядер ^{8}Li с ядрами ^{6}Li в кисталлах типа LiF.

1. Широкий класс физических явлений, таких например, как кросс-релаксация β-активных ядер [1 – 3], деполяризация люминесценции [4 – 7] и прыжковая проводимость [8 – 11], описывается кинетическим уравнением

$$\frac{\partial}{\partial t}\widetilde{P}_{xy} = -\sum_z \left(n_z \nu_{zx} n_x \widetilde{P}_{xy} - n_x \nu_{xz} n_z \widetilde{P}_{zy}\right), \quad \widetilde{P}_{xy}(0) = n_y \delta_{xy}. \tag{1}$$

Здесь $\widetilde{P}_{xy}$ есть вероятность обнаружить возбуждение в узле x d-мерной правильной решетки, если при $t = 0$ оно находилось в y, ν_{xz} – вероятность перехода в единицу времени из z в x (в общем случае $\nu_{xz} \neq \nu_{zx}$ [1, 2]), а $n_x = 0$ или единице – число заполнения узла x объектом, способным принять возбуждение, который будем именовать донором. Отличные от нуля числа заполнения выделяют неупорядоченную решетку доноров, по которой мигрирует возбуждение. Наблюдаемые величины описываются через функцию Грина $P_{xy} = \langle \widetilde{P}_{xy} \rangle$ (угловые скобки означают усреднение по числам заполнения). Для определенности ниже принят степенной закон зависимости ν_{xz} от расстояния $\nu_{xz} \sim \frac{1}{|x - z|^s}$.

Если доноры образуют правильную решетку, то уравнение (1) (при $\nu_{xz} = \nu(x - z)$) решается преобразованием Фурье. Неупорядоченность приводит к чрезвычайному усложнению задачи. Точные сведения о ее решении состоят в том, что получено низшее по концентрации $c = \langle n_x \rangle$ приближение [1, 3, 4]; доказано, что при $c \ll 1$ [1]

$$P_{yy}(t) = c f(\bar{\nu} t); \quad P_{xy}(t) = c^2 g((x - y)/\bar{r}, \bar{\nu} t), \quad x \neq y, \tag{2}$$

где $\bar{\nu}$ есть вероятность перехода на среднем расстоянии $\bar{r}$ между донорами, а символы f и g не зависят от времени, координат и концентрации (теорема о сингулярной точкеf); получены слабые оценки на P_{xy} снизу [1] и на P_{yy} сверху [4]; произведен численный расчет лаплас-образа P_{yy} [5]. Для одномерных систем с переносом к ближайшему соседу получена асимптотика $P_{yy}(t \to \infty)$ [7]. Точность же приближений, используемых при оценке $P_{xy}(t \to \infty)$ (см. [3, 8, 10] и работы, цит. в [1, 3, 8, 10, 11]), неизвестна.

В настоящей работе получено общее концентрационное разложение P_{xy} и приведены численные результаты для $P_{yy}(t)$ с точностью до

c^3 включительно в случае кросс-релаксации β-активных ядер.

2. Учитывая, что $n_x P_{xy} = P_{xy}$, представим решение уравнения (1) в виде

$$P_{xy} = \langle n_y \exp\left(-\sum_z A^z n_z t\right)\rangle_{xy} = c \langle \exp\left(-\sum_{z\neq y} A^z n_z t - A^y t\right)\rangle_{xy},$$

где $A^z_{xq} = \delta_{xq}\nu_{zx} - \delta_{zx}\nu_{xq}$. Введем оператор симметризации S [12], действующий на операторы A^z. За символом S операторы коммутируют, поэтому

$$P_{xy} = c \langle S \exp\left(-\sum_{z\neq y} A^z n_z t - A^y t\right)\rangle_{xy} = c\,\{ S \prod_{z\neq y} [1 + c(e^{-A^z t} - 1)]\times$$

$$\times e^{-A^y t}\}_{xy} = c\,\{S \exp[-A^y t + \sum_{z\neq y} \ln(1 + c e^{-A^z t} - c)]\}_{xy}. \quad (3)$$

3. Если $c \ll 1$, то пренебрегая выражениями типа $c^k \bar{\nu} t$ в сравнении с $\bar{\nu} t$, что соответствует удержанию первого члена разложения логарифма в (3) по c, получаем

$$P_{xy} = c\,\{S \exp[-A^y t + c \sum_z (e^{-A^z t} - 1)]\}_{xy} = c\, e^{-cN} K_{xy}(N). \quad (4)$$

Здесь область суммирования ограничена объемом, содержащим N узлов, (соответственно $\sum_z \to \sum_z{}'$), а

$$K_{xy} = S\,[\exp(-A^y t + c \sum_z{}' e^{-A^z t})]_{xy} = \sum_{m=0}^{\infty} \frac{c^m}{m!} P^{(m)}_{xy}(N), \quad (5)$$

$$P^{(m)}_{xy}(N) = \sum_{z_1\ldots z_m}{}' [\exp(-\sum_{i=1}^{m} A^{z_i} t - A^y t)]_{xy} = \sum_{z_1\ldots z_m}{}' B^{(m)}_{xy}(y, z_1, \ldots, z_m).$$

Из определения операторов A^z следует, что

$$B^{(m)}_{xy}(y, z_1, \ldots, z_m) = \sum_{i=0}^{m} b^{(m)}_i(z_0, z_1, \ldots, z_m)\,\delta_{xz_i}, \quad z_0 = y, \quad (6)$$

а $b^{(m)}_i$ удовлетворяют уравнению

$$\frac{\partial}{\partial t} b^{(m)}_i = -\sum_{j=0}^{m} (\nu_{ji} b^m_i - \nu_{ij} b^{(m)}_j), \quad b^{(m)}_i(t=0) = \delta_{i0}, \quad \nu_{ij} = \nu_{z_i z_j}, \quad (7)$$

описывающему миграцию возбуждения по системе из $m+1$ доноров, расположенных в узлах $y, z_1, \ldots, z_m$. Подстановка (6) в (5) дает

$$P_{yy} = c e^{-cN} \sum_{m=0}^{\infty} \frac{c^m}{m!} \sum_{z_1 \ldots z_m} b_0^{(m)}(y, z_1, \ldots, z_m), \tag{8а}$$

$$P_{x \neq y} = c^2 e^{-cN} \sum_{m=0}^{\infty} \frac{c^m}{m!} \sum_{z_2 \ldots z_{m+1}}' b_1^{(m+1)}(y, x, z_2, \ldots, z_{m+1}). \tag{8б}$$

Наконец, производя полное разложение по c, получим

$$P_{yy} = c \sum_{m=0}^{\infty} \frac{c^m}{m!} \sum_{z_1 \ldots z_m} \sum_{k=0}^{m} C_m^k \, b_0^{(k)} (y, z_1, \ldots, z_k)(-1)^{m-k}, \tag{9а}$$

$$P_{x \neq y} = c^2 \sum_{m=0}^{\infty} \frac{c^m}{m!} \sum_{z_1 \ldots z_m} \sum_{k=0}^{m} C_m^k \, b_1^{(k+1)} \times$$

$$\times (y, x, z_1, \ldots, z_{k+1})(-1)^{m-k}. \tag{9б}$$

Эти формулы дают решение поставленной задачи. В лаплас-представлении $(\phi/\lambda) = \int^{\infty} dt\, e^{-\lambda t} \phi(t)$) уравнения (7) превращаются в алгебраические и $b_i^{(k)}(\lambda)$ выражаются через отношение определителей.

Формулы (9) содержат суммирования по всем узлам решетки. Но из физических соображений ясно, что следует исключить любые совпадения переменных суммирования z_i, поскольку в одном узле не может быть более одного донора.

4. Для простоты формулы (9) были выведены в предположении, что $c \ll 1$. В действительности они справедливы при всех c. Это можно доказать, разлагая по c произведение, фигурирующее в (3).

5. Наш вывод основывался на кинетическом уравнении (1), однако формулы (8), (9) гораздо более общи. Они справедливы, например, и для процессов, описываемых гамильтонианами типа $H = \sum_{xz} n_x n_z h(x, z)$, если $\widetilde{P}_{xy} = n_x n_y \operatorname{Sp} Q_x Q_y(t)/\operatorname{Sp} 1$, где h и Q_x операторы, не зависящие от n. Но в этом случае

$$b_i^{(k)} = \operatorname{Sp} Q_{z_i} U_{(k)}^{+} Q_y U_{(k)} / \operatorname{Sp} 1, \quad U_{(k)} = \exp\Big[-i \sum_{j,m=0}^{k} h(z_j, z_m)\, t\Big].$$

В таком виде можно сформулировать задачу вычисления корреляторов в теории неупорядоченных парамагнетиков. Для доказательства достаточно заметить, что любая функция $\phi(n_x) = \phi(0) + n_x(\phi(1) - \phi(0))$.

Это позволяет представить, например P_{yy}, в виде ряда по $n_y n_{z_1} \ldots n_{z_k} b_o^{(k)}$. Все прочие действия уже не зависят от типа динамики.

6. Метод моментов [13] состоит в разложении корреляторов в ряд Тейлора по t. В случае $c << 1$ первые члены этого разложения описывают ничтожно малую часть $\sim c$ полного изменения P_{xy}. Разложение (8), (9) дает альтернативный метод, в котором первые члены описывают изменения корреляторов на величину порядка единицы. Напомним, что если процесс описывается уравнением (1), то разложение фактически происходит по $c t^{d/s}$ (ср. с (2)). Расчет коэффициентов при c^n не намного превосходит по сложности расчет моментов. Но формулировка разложений (8), (9) в фурье-представлении сложна. Поэтому сравнение с экспериментом должно производиться во временно́м представлении.

7. В случае кросс-релаксации β-активных ядер ^8Li с ядрами ^6Li [1 – 3] в кристаллах типа LiF

$$\nu_{xz} = \nu_o r_o^6 (1 - 3\cos^2\theta_{xz})^2 |x - z|^{-6}, \quad x \neq y \neq z,$$

$$\nu_{xy} = \nu_{yx}/\xi = \nu_1 r_o^6 (1 - 3\cos^2\theta_{xy})^2 |x - y|^{-6}, \quad \xi = 3.$$

В пределе малых c можно заменить суммирования по z на интегрирования, и с точностью до c^3

$$P_{yy}(t) = c\left\{1 - \left(\frac{\beta_1 t}{\xi + 1}\right)^{1/2} + \beta_1 t\left[\frac{\pi}{4(\xi + 1)} - a f_1(\mu) - \mu\xi a f_2(\mu)\right]\right\}. \tag{10}$$

Здесь $\beta_1 = c^2 \nu_1 \pi^3 (16 r_o^3/(9\Omega\sqrt{3}))^2$, $a = [\pi^3(16/(9\sqrt{3}))^2]^{-1}$, $\mu = \nu_o/\nu_1$, а Ω – объем элементарной ячейки. Функции $f_1(\mu)$ и $f_2(\mu)$ положительны и приведены на рис.1. Зависимость $P_{yy}(\mu)$ отражает зависимость кросс-релаксации от внешнего магнитного поля (рис.2).

8. В заключение сделаем несколько замечаний о способах введения массового оператора. Если положить (в представлении Лапласа) $\lambda P/c = 1 - M(\lambda) P/c$ и определить M по известным разложениям (8), (9), то M_{xz} будет зависеть лишь от $x - z$, но придать ему наглядный смысл весьма трудно. Если же для формального определения M воспользоваться методом проекторов Цванцига, приняв в качестве проектора оператор усреднения, то получаемый из уравнения (1) M_{xz} будет зависеть еще и от y [3]. В этом случае можно строить наглядные аппроксимации, как это сделано в [3] с целью введения в теорию Шера и Лэкса [8] учета сингулярности точки y, но возникают трудности с описанием P_{xy} при x близких к y, для устранения которых нужна информация о точном поведении P_{xy} при малых βt. Отметим, что в работе [11], специально посвященной получению массового оператора методом проекторов Цванцига, неправильно поставлено начальное условие к уравнению (1) и все выведенные формулы неверны. Однако, они не

бесполезны, поскольку для P_{yy}, в ряде задач являющейся экспериментально наблюдаемой величиной, справедливо соотношение $P_{yy} = \bar{P}_{yy} - (1-c)$, а $P_{x \neq y} = \bar{P}_{xy}$, где $\bar{P}_{xy}$ есть усредненное решение уравнения (1) с начальным условием $\widetilde{P}_{xy}(0) = \delta_{xy}$, которое использовано в [11].

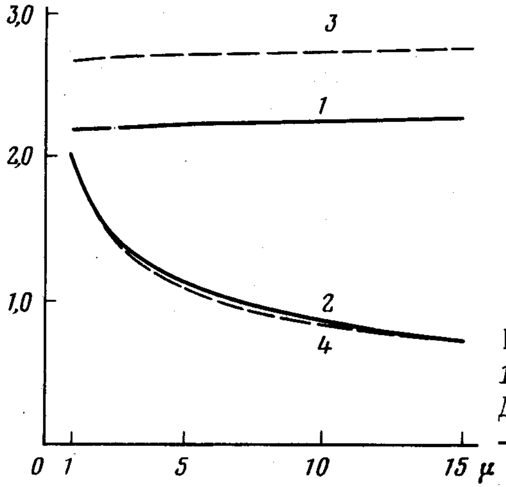

Рис.1. Зависимость функций ξf_1 (линии *1* и *3*) и ξf_2 (линии *2* и *4*) от $\mu = \nu_0/\nu_1$. Для сплошных линий $\xi = 3$, пунктир — $\xi = 1$

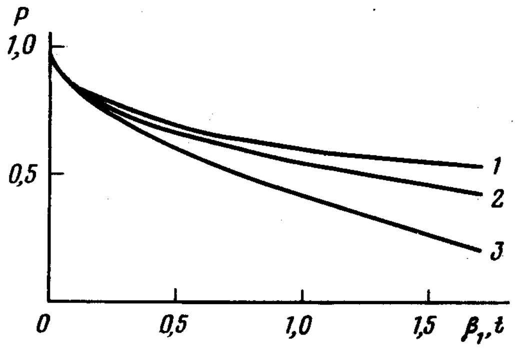

Рис.2. Зависимость $P = P_{yy}(\beta_1 t)/P_{yy}(0)$ от $\beta_1 t$ при $\xi = 3$: *1* соответствует $\mu = 1$, *2* – $\mu = 3$, *3* – $\mu = 9$. При $\beta_1 t = 1,5$ отношение члена пропорционального $\beta_1 t$ к члену $\sim \sqrt{\beta_1 t}$ в формуле равно $-0,27$; $-0,12$; $0,20$ для $\mu = 1, 3, 9$ соответственно

Благодарим за полезные обсуждения Ю.Г.Абова, В.А.Ацаркина, А.Д. Гулько, М.А. Кожушнера, А.А.Лундина, В.В.Поморцева, В.П.Сакуна, С.С.Тростина и И.С.Шапиро.

Институт теоретической
и экспериментальной физики

Поступила в редакцию
2 апреля 1980 г.

Литература

[1] Ф.С.Джепаров, А.А.Лундин. ЖЭТФ, 75, 1117, 1978.

[2] Ф.С.Джепаров, А.А.Лундин. Всесоюзный симпозиум по магнитному резонансу. Тезисы докладов, стр. 107, Пермь, 1979.

[3] Ф.С.Джепаров. Всесоюзный симпозиум по магнитному резонансу. Тезисы докладов, стр.108, Пермь, 1979.

[4] Е.Н.Бодунов. Оптика и спектроскопия, **41**, 990, 1978.

[5] Е.Н. Бодунов. Изв. АН СССР, сер. физ., **42**, 303, 1978.

[6] S.K.Lyo. Phys. Rev., **B20**, 1297, 1979.

[7] J.Bernasconi, S.Alexander, R.Orbach. Phys. Rev. Lett., **41**, 185, 1978.

[8] H.Scher, M.Lax. Phys. Rev., **B7**, 4491, 4502, 1973.

[9] J.Bernasconi, H.Beyeler, S. Strassler, S.Alexander. Phys. Rev. Lett., **42**, 819, 1979.

[10] H.Bottger, V.Bryskin, G.Yashin. J. Phys., **C12**, 2797, 1979.

[11] J.Klafter, R.Sibley. Phys. Rev. Lett., **44**, 55, 1980.

[12] R.Kubo. J. Phys. Soc. Jpn., **17**, 1100, 1962.

[13] А.Абрагам. Ядерный магнетизм, М., ИИЛ, 1963.