

ON THE VACANCION MOBILITY OF DEFECTONS IN 2D QUANTUM CRYSTALS

M. Z. HARUTYUNYAN, G. A. VARDANYAN, A. S. SAHAKYAN

The theory of inelastic scattering of a vacancy on a defecton (He^3 impurity in solid He^4 , an inverted spin in spin-polarized solid He^3) in quantum crystals is constructed on the basis of Lifshits equations. This theory was used for the investigation of temperature dependence of defecton diffusion coefficient. The case of thermally activated vacancies is considered.

Изв. АН Армянской ССР, Физика, т. 23, вып. 5, 274—279 (1988)

УДК 534.512

ИССЛЕДОВАНИЕ ВОЗМОЖНОСТИ ПРИМЕНЕНИЯ МЕТОДА ФУРЬЕ-АНАЛИЗА МЁССБАУЭРОВСКИХ СПЕКТРОВ ДЛЯ ИЗУЧЕНИЯ МОЛЕКУЛЯРНОЙ ДИНАМИКИ

А. Р. МКРТЧЯН, А. З. АЦАГОРЦЯН, Г. Н. НАДЖАРЯН, Н. М. ГАСПАРЯН

Институт прикладных проблем физики АН АрмССР

(Поступила в редакцию 10 ноября 1987 г.)

Методом численного моделирования экспериментальных спектров гамма-резонансного поглощения исследована временная зависимость средне-квадратичного смещения (СКС) мёссбауэровских ядер (МЯ) для двух типов диффузионного движения — неограниченной и ограниченной диффузии. На основе анализа временной зависимости относительной ошибки СКС определены оптимальные условия проведения соответствующего эксперимента и вычислены величины тех интервалов времени, в которых временные корреляционные функции движения МЯ могут быть определены с заранее заданной (в рассматриваемом случае — $\pm 10\%$) точностью.

Исследование молекулярной подвижности несомненно представляет актуальную проблему, лежащую в основе понимания физики различных процессов, протекающих в твердых телах, биомолекулах, жидкостях [1—4] и т. д. Возможность решения этой проблемы методом гамма-резонансной спектроскопии (ГРС) связана с тем обстоятельством, что форма линии спектра поглощения γ -квантов зависит от временной корреляционной функции (ВКФ) координаты мёссбауэровских ядер (МЯ) [1]. ВКФ, в принципе, содержит всю информацию о характере движения МЯ (амплитуда колебаний, времена корреляции, коэффициент диффузии и т. д.). Впервые на возможность непосредственного определения ВКФ из экспериментального спектра, без априорных предположений о характере движения, указали авторы работы [2], однако ими не была исследована зависимость погрешности полученной таким образом ВКФ от условий проведения соответствующего эксперимента. Экспериментальные ошибки, обусловленные конечным временем экспозиции (T_{sp}), ограниченным диапа-

зоном скоростей $[-v_m, v_m]$ вибратора ГР-спектрометра, где v_m — максимальная скорость вибратора, и ограниченным числом каналов анализатора (N_h) в совокупности приводят, как показано ниже, к резкому увеличению погрешности ВКФ в области малых и больших времен.

В настоящей работе сделана попытка на примере модельной задачи выявить зависимость величины суммарной ошибки ВКФ от статистических и систематических ошибок, которые с неизбежностью присутствуют в реальном эксперименте и определяются указанными выше параметрами. При этом, очевидно, наибольший интерес представляет исследование временной разрешающей способности данного метода, т. е. нахождение того интервала времени, в котором ВКФ можно определить из экспериментального спектра с заранее заданной точностью.

1. Как известно, истинную форму линии поглощения $W_a(\omega)$ для одиночной линии в случае гауссова стационарного случайного процесса можно представить в виде [5]

$$W_a(\omega) = \frac{1}{\pi} \operatorname{Re} \int_0^{\infty} \exp \left\{ -i(\omega - \omega_0)t - \frac{\Gamma_a t}{2} - \frac{1}{\lambda_0^2} [\theta(0) - \theta(t)] \right\} dt, \quad (1)$$

где λ_0 — длина волны γ -квантов, Γ_a — естественная ширина линии МЯ в поглотителе, $\theta(t) = \langle x(t)x(0) \rangle$ — ВКФ координаты, ω_0 — частота резонансного перехода МЯ.

Для „тонкого поглотителя“, т. е. при $\beta_a = \sigma_0 n_a \ll 1$, где σ_0 — резонансное сечение поглощения, n_a — концентрация МЯ, нетрудно показать, что

$$\tilde{W}_a(t) = \frac{1}{\beta_a} [\tilde{\gamma}(t)/\tilde{K}_s(-t)], \quad (2)$$

где $\tilde{\gamma}$, $\tilde{W}_a$ и $\tilde{K}_s$ — фурье-образы соответственно экспериментального спектра, контура линии поглощения и контура линии испускания источника. Используя формулы (1) и (2), для величины среднеквадратичного смещения (СКС) МЯ в момент времени $t = \langle [\Delta x(t)]^2 \rangle = 2[\theta(0) - \theta(t)]$ — в случае лоренцовой формы линии испускания источника получаем выражение

$$\langle [\Delta x(t)]^2 \rangle = -\lambda_0^2 [2 \ln(\tilde{\gamma}(t)/\tilde{\gamma}(0)) + (\Gamma_s + \Gamma_a)t]. \quad (3)$$

Таким образом, зная параметры источника и поглотителя (Γ_s , Γ_a), из экспериментального спектра можно непосредственно определить временную зависимость СКС МЯ. Для случая, когда эти параметры неизвестны, можно получить относительное изменение СКС. Для этого достаточно иметь спектры, соответствующие двум разным внешним условиям (например разным температурам). Тогда

$$\langle [\Delta x(t)]^2 \rangle_{T_2} - \langle [\Delta x(t)]^2 \rangle_{T_1} = 2\lambda_0^2 \ln [\tilde{\gamma}_{T_1}(t)/\tilde{\gamma}_{T_2}(t)]. \quad (4)$$

Если экспериментальный спектр не является одиночной линией, а имеет более сложную форму, тогда в подынтегральном выражении в (1) множитель $\exp(-i\omega_0 t - \Gamma_a t/2)$ следует заменить на сумму $\sum_j A_j \exp \times \times (-i\omega_{0j} t - \Gamma_j t/2)$, где Γ_j , ω_{0j} — полуширина и центр тяжести j -компоненты спектра, A_j — весовой множитель.

Поставленная задача решалась методом численного моделирования мессбауэровских спектров поглощения на ЭВМ ЕС 1045 для двух типов движения МЯ: а) неограниченной диффузии, описываемой ВКФ $\theta(t) = 2Dt$, где D — коэффициент диффузии [5], б) ограниченной диффузии, описываемой ВКФ $\theta(t) = \theta(0) \exp(-t/\tau_c)$, где $\theta(0) = kT/m\Omega^2$, $\tau_c = \gamma/m\Omega^2$ [4,5], m , Ω и γ — масса, частота и коэффициент трения броуновского осциллятора с большим затуханием ($\gamma/m \gg \Omega$), T — температура, k — постоянная Больцмана.

С помощью этих ВКФ вычислялись «входные» спектры поглощения γ -квантов. Экспериментальные спектры поглощения моделировались наложением на полученные входные спектры соответствующих статистических ошибок с помощью генератора случайных чисел. Дальнейшая обработка экспериментальных спектров по формуле (3) позволяла определить ВКФ, которые мы в дальнейшем будем называть экспериментальными ВКФ. Для каждой реализации полученного указанным способом экспериментального спектра вычислялась соответствующая экспериментальная ВКФ, ошибка которой определялась усреднением по различным (обычно по 15–20) реализациям.

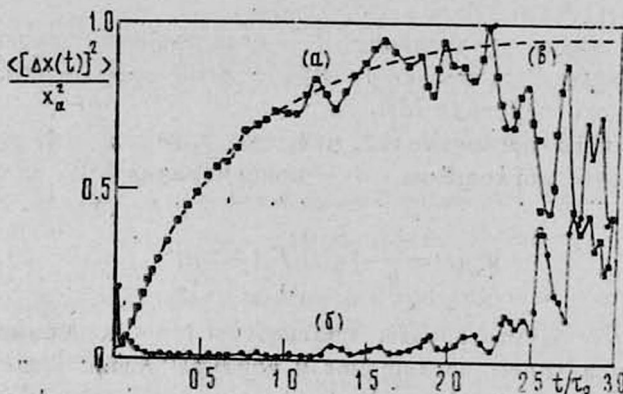


Рис. 1. Зависимость от времени СКС (а) и его относительной ошибки (б) для случая ограниченной диффузии МЯ. Пунктиром обозначена теоретическая зависимость СКС от времени, x_a — амплитуда колебаний; численные значения параметров рассматриваемой модели приведены в работе [4].

2. На рис. 1 в качестве примера представлены зависимости СКС, а также величины относительной ошибки СКС от времени для случая ограниченной диффузии. Анализ последней дает возможность определить величину временного интервала достоверного (с заранее заданной точностью) определения экспериментальных ВКФ. Систематические ошибки, проявляющиеся на графиках временной зависимости СКС (рис. 1а) в виде осцилляций с периодом π/v_m и с амплитудой, обратно пропорциональной v_m , возникают, как известно, из-за ограниченного диапазона скоростей вибратора и конечного «шага эксперимента» $h = 2v_m/N_k$. Для выяснения роли систематических ошибок были вычислены экспериментальные ВКФ в отсутствие статистических ошибок, т. е. при бесконечном времени эксперимента. Оказалось, что t_{min} (левая граница искомого временного диапазона, для которого относительная ошибка ВКФ не превышает $\pm$

10%) обратно пропорционально v_m (при условии, что $h \lesssim 0,2 \Gamma_{\text{exp}}$). В то же время правая граница искомого диапазона (t_{max}), возрастая с увеличением v_m и N_k , выходит на насыщение.

Естественно, что наличие статистических ошибок эксперимента, абсолютную величину которых в ГРС можно представить в виде $\Delta\gamma \simeq \sqrt{2N_k/\bar{N}T_{sp}}$, где $\bar{N}$ — среднее число γ -квантов, попадающих на единицу времени, резко ограничивает величину интервала $\Delta t = t_{\text{max}} - t_{\text{min}}$. На рис. 2 показано, как с уменьшением T_{sp} временная разрешающая способность метода ухудшается. Из этого рисунка также видно, что для заданной интенсивности потока γ -квантов ($\bar{N} \simeq 10^7$ квант/ч) экспозиция с $T_{sp} \lesssim 5$ ч нецелесообразна, поскольку в этом случае Δt прак-

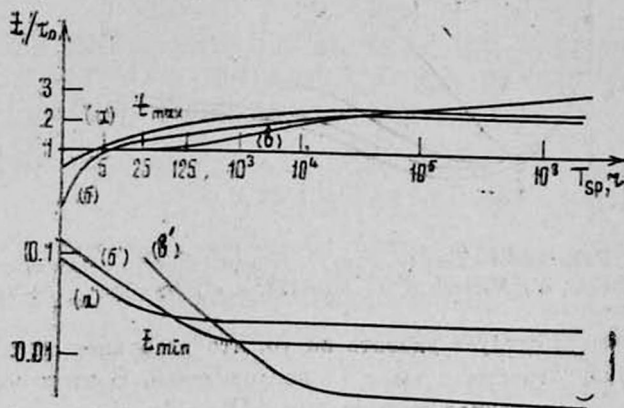


Рис. 2. Зависимость t_{max} (а, б, в), t_{min} (а', б', в') от времени экспозиции T_{sp} : а, а') $N_k=125$, $V_m=2,5$ мм/с; б, б') $N_k=256$, $V_m=4,5$ мм/с; в, в') $N_k=512$, $V_m=14,0$ мм/с.

тически стремится к нулю. За разумное же время экспозиции, например $T_{sp}=25$ ч, рассматриваемый метод позволяет «наблюдать» процессы, характерные времена которых находятся в интервале $(0,05-1)\tau_0$. В случае ^{57}Fe это — времена порядка $7 \cdot 10^{-9} - 1,4 \cdot 10^{-7}$ с, а в случае Zn $\Delta t \simeq 5 \cdot 10^{-7} - 10^{-5}$ с. Таким образом, используя набор МЯ, которые имеют существенно отличающиеся друг от друга времена возбужденных состояний, можно «охватить» чрезвычайно широкий временной интервал исследований.

На рис. 3 показана зависимость t_{min} , t_{max} от v_m и N_k (при $T_{sp}=25$ ч). Из рисунка следует, что увеличение v_m до определенного значения приводит к лучшему «разрешению» левого края исследуемого временного диапазона, что связано, в соответствии со сказанным выше, с уменьшением систематических ошибок. При дальнейшем увеличении v_m начинают доминировать ошибки, обусловленные увеличением «шага эксперимента». Правая же граница искомого временного интервала (t_{max}) с увеличением v_m сдвигается влево из-за увеличивающегося вклада низкочастотных гармоник статистических шумов. При этом имеется некоторая область для оптимального выбора параметров v_m и N_k , которая справа ограничивается необходимостью соблюдения условия $h \lesssim 0,5 \Gamma_{\text{exp}}$, а слева — малым диапа-

зоном скоростей, в соответствии со сказанным выше. Поскольку в указанной области наблюдается слабая зависимость величины Δt от v_m и N_k , для получения оптимальной величины Δt достаточно выбрать $10 \lesssim v_m/\Gamma_{\text{exp}} \lesssim 50$, $N_k \gtrsim 125$. Следует отметить, что зависимость величины Δt от экспериментальных параметров (v_m , N_k , T_{sp}) не зависит от выбранной модели движения МЯ.

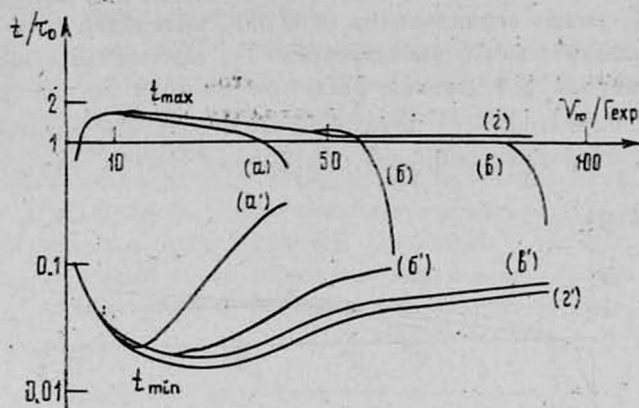


Рис. 3 Зависимость t_{max} (a, б, в, г), t_{min} (a', б', в', г') от v_m/Γ_{exp} при $T_{sp}=25^\circ\text{C}$: а, а') $N_k=64$; б, б') $N_k=128$; в, в') $N_k=256$, г, г') $N_k=512$.

В заключение следует указать на то, что указанная методика не применима в случае «толстых» ($\beta_a \gtrsim 1$) поглотителей. В этом случае для получения истинного спектра поглощения (1) необходимо решить обратную задачу мёссбауэровской спектроскопии, т. е. найти $W_a(\omega)$ из экспериментального спектра $\eta(\nu)$ [6]. Нахождение $W_a(\omega)$ в этом случае представляет собой некорректную математическую задачу, устойчивое приближенное решение которой можно найти при использовании метода регуляризации Тихонова [7]. В этом случае при вычислении экспериментальных ВКФ следует учесть также ошибки, возникающие при численном решении обратной задачи. В литературе отсутствуют данные, позволяющие определить величину этих ошибок в зависимости от входных ошибок эксперимента, поэтому данный вопрос требует отдельного рассмотрения. Для практического использования рассматриваемого здесь метода при исследовании динамики МЯ очевидно необходимо решать модельные задачи, где анализировались бы более сложные движения МЯ (например, случай, когда МЯ участвует одновременно в процессах типа непрерывной и ограниченной или скачкообразной диффузии).

ЛИТЕРАТУРА

- 1 Singwi K. S., Sjölander A. Phys. Rev., 120, 1093 (1960).
- 2 Bonbury D. Stet al. Phys. Rev. Lett., 6, 34 (1963).
3. Гольдманский В. И., Крунянский Ю. Ф., Фролов Е. Н. Молек. биол., 17, 532 (1983).
4. Шайтан К. В., Рубин А. Б. Биофизика, 25, 796 (1980).
5. Хир К. Статистическая механика. Изд. Мир, М., 1978, с. 516.
6. Габриелян Р. Г., Мартиросян А. А. Изв. АН АрмССР, Физика, 19, 282 (1984).
7. Тихонов А. Н., Арсенин В. Я. Методы решения некорректных задач. Изд. Наука, М., 1979.

ՄՈԼԵԿՈՒԼԱՐ ԴԻՆԱՄԻԿԱՅԻ ՈՒՍՈՒՄԵԱՍԻՐՈՒԹՅԱՆ ՀԱՄԱՐ
ՄՅՈՍԲԱՈՒԵՐՅԱՆ ՍՊԵԿՏՐՆԵՐԻ ՖՈՒՐՅԵ-ՎԵՐԼՈՒԾՈՒԹՅԱՆ
ՕԳՏԱԳՈՐԾՄԱՆ ՀԱՐԱՎՈՐՈՒԹՅԱՆ ՀԵՏԱԶՈՏՈՒԹՅՈՒՆԸ

Ա. Բ. ՄԿՐՏՅԱՆ, Ա. Զ. ՀԱՅԱԳՈՐԾՅԱՆ, Գ. Ն. ՆԱԶԱՐՅԱՆ, Ն. Մ. ԳԱՍՊԱՐՅԱՆ

Էքսպերիմենտալ դամա-ռեզոնանսային կլանման սպեկտրների թվային մոդելավորման միջոցով ուսումնասիրված է մյուսբաուերյան միջուկների միջին բառակուսային շեղման ժամանակային կախումը տարրեր տիպի դիֆուզիոն շարժումների առկայության դեպքում: Միջին բառակուսային շեղման հարաբերական սխալի ժամանակային կախման վերլուծության հիման վրա որոշված են համապատասխան փորձի իրագործման համար անհրաժեշտ պարամետրների ամենաբարենպաստ արժեքների տիրույթները և տրված են այն ժամանակահատվածների մեծությունները, որտեղ մյուսբաուերյան միջուկների շարժման կորելյացիոն ֆունկցիաներն հնարավոր է որոշել նախորդ տրված (տվյալ դեպքում $\pm 10\%$) ճշտությամբ:

FOURIER EXPANSION OF MÖSSBAUER SPECTRA AND
POSSIBILITY OF ITS APPLICATION IN THE STUDY
OF MOLECULAR DYNAMICS

A. R. MKRTCHYAN, A. Z. ATSAGORTSYAN, T. N. NADZHARYAN,
N. M. GASPARYAN

Numerical modelling of experimental spectra of gamma resonance absorption was used for the investigation of time dependence of mean square displacement of Mössbauer nuclei for their limited and unlimited diffusion. Based on the analysis of time dependence of the relative error of mean square displacement, optimal conditions for the corresponding experiment were obtained and time intervals were calculated, within which the time correlation functions of the motion of Mössbauer nuclei may be determined with given (in this case $\pm 10\%$) accuracy.

Изв. АН Армянской ССР, Физика, т. 23, вып. 5, 279—282 (1988)

УДК: 538.22

РЕЛАКСАЦИЯ ВНУТРИДУБЛЕТНЫХ ПЕРЕХОДОВ
 Cr^{3+} В ИЗУМРУДЕ

М. О. МАНВЕЛЯН, Р. М. МАРТИРОСЯН

Институт радиофизики и электроники АН АрмССР

(Поступила в редакцию 30 июля 1987 г.)

Экспериментально исследована спин-решеточная релаксация внутридублетных переходов 1—2 и 3—4 ионов Cr^{3+} в изумруде. Из температурной зависимости скорости релаксации определены концентрационно-зависящие механизмы релаксации для этих переходов.

Известно, что в разбавленных парамагнитных кристаллах, в которых взаимодействиями между отдельными магнитными центрами (МЦ) можно пренебречь, основным механизмом спин-решеточной релаксации (СРР) при низких температурах является прямой процесс Ван-Флека с непосред-