

ТЕОРИЯ ЯДЕРНОЙ СПИН-РЕШЕТОЧНОЙ РЕЛАКСАЦИИ В ТВЕРДОМ ОРТОВОДОРОДЕ

К. Валясек, А. Л. Куземский

Получено выражение для времени продольной ядерной спин-решеточной релаксации через спектральные интенсивности корреляционных функций. Роль решетки играет либронная подсистема, корреляционные функции которой вычисляются в приближении хаотических фаз.

1. ВВЕДЕНИЕ

Проблема исследования природы элементарных возбуждений в твердом ортоводороде ниже точки фазового перехода [1] вызвала в последнее время значительный интерес [2—4]. Помимо самостоятельного физического значения, эта система интересна с точки зрения общей теории многих частиц как еще одна модель, в которой возможен фазовый переход [5—9].

Расчеты показывают [2—4], что ниже точки фазового перехода существуют определенные коллективные возбуждения, происходящие из-за межмолекулярного квадруполь-квадрупольного взаимодействия, которые называют либронами. Эти квазичастицы представляют собой некие «ротационные волны» в том смысле, что они распространяются подобно волне и связаны с возбуждением вращательных степеней свободы. Однако, так как в области низких температур среднее значение углового момента каждой молекулы водорода равно нулю, нужно говорить скорее о либрационном движении, а не о вращении. Другими словами, квадруполь-квадрупольное взаимодействие слабо затормаживает вращение молекул, причем так, что полный угловой момент каждой молекулы остается неизменным (т. е. $J = 1$), но z -компонента углового момента меняется.

Прямого экспериментального подтверждения существования либронов, по-видимому, пока не существует [10, 11]. Поэтому представляется важным дальнейшее теоретическое и экспериментальное исследование таких процессов в твердом водороде, как спин-решеточная релаксация [12—15], ядерный магнитный резонанс [16], инфракрасное поглощение [17] и др.

В настоящей статье изучается продольная релаксация подсистемы ядерных спинов вследствие ее взаимодействия с либронной подсистемой, которая рассматривается в приближении хаотических фаз.

В работе Хоммы [13] при исследовании этой задачи для рассмотрения либронной подсистемы применялось приближение, аналогичное методу Гольштейна — Примакова в теории спиновых волн. Эксперимент [15],

по-видимому, качественно подтверждает порядок величины времени релаксации, полученный в этой работе. Ранее ядерная спин-решеточная релаксация рассматривалась в работах Мория и Мотизуки [12], Харриса и Хунта [14] для температур выше точки фазового перехода. Ряд работ по спин-решеточной релаксации были выполнены Сангом [18—20] для разбавленных твердых растворов водорода и водорода и дейтерия.

Следуя работе [12], мы предполагаем следующие механизмы релаксации:

1) внутримолекулярное диполь-дипольное взаимодействие и I·J связь, модулированные межмолекулярным квадруполь-квадрупольным взаимодействием;

2) межмолекулярное диполь-дипольное взаимодействие, модулированное колебаниями решетки. Второй механизм, однако, дает малый вклад по сравнению с первым [13], поэтому мы будем рассматривать первый механизм релаксации. Можно сказать, что в низкотемпературной фазе релаксация происходит вследствие неупругого рассеяния либронов на ядерных спинах. Главный вклад дают рамановские процессы, а прямые процессы запрещены, так как энергетическая щель в спектре либронов порядка 10°K , что много больше расстояния между ядерными зеемановскими уровнями.

В разделе 2 вычислены корреляционные функции для либронной подсистемы в приближении хаотических фаз. Получены уравнения для параметра упорядочения. В разделе 3 получено выражение для времени продольной ядерной спин-решеточной релаксации через спектральные интенсивности корреляционных функций решетки. В разделе 4 время продольной спин-решеточной релаксации вычислено для температур ниже точки фазового перехода.

2. КОРРЕЛЯЦИОННЫЕ ФУНКЦИИ ДЛЯ ЛИБРОННОЙ ПОДСИСТЕМЫ

Рассмотрим кристалл ортоводорода ниже точки фазового перехода. Гамильтониан системы молекул ортоводорода в ротационном состоянии $J = 1$, связанных квадруполь-квадрупольным взаимодействием, запишем в виде [4]

$$\mathcal{H} = \sum_{ij} \sum_{m,n} \gamma_{ij}^{mn} O_i^m O_j^n, \quad m, n = 0, \pm 1, \pm 2. \quad (1)$$

Здесь γ_{ij}^{mn} — константы связи [4], а операторы O_i^m связаны с операторами J_i^z, \pm в подпространстве $J = 1$ следующим образом ($J^\pm = J^x \pm iJ^y$):

$$\begin{aligned} O_i^0 &= 3(J_i^z)^2 - 2, \\ O_i^{\pm 1} &= J_i^z J_i^\pm + J_i^\pm J_i^z, \\ O_i^{\pm 2} &= (J_i^\pm)^2. \end{aligned} \quad (1a)$$

Гамильтониан (1) записан в системе координат (в дальнейшем называемой подрешеточной), в которой ось z_i каждой молекулы i направлена по оси симметрии молекулы i . Найдено [21—24], что молекулярная решетка твердого водорода ниже точки фазового перехода состоит из четырех простых кубических подрешеток. Для каждой подрешетки оси квантования

располагаются вдоль различных диагоналей кубической единичной ячейки ГЦК-решетки.

Перейдем теперь к фурье-представлению для операторов O_i^m

$$\mathcal{H} = \sum_{\mathbf{k}} \sum_{\alpha\beta} \sum_{m,n} \gamma_{\alpha\beta}^{mn}(\mathbf{k}) O_{\alpha}^m(\mathbf{k}) O_{\beta}^n(-\mathbf{k}), \quad (2)$$

где

$$\begin{aligned} \gamma_{\alpha\beta}^{mn}(\mathbf{k}) &= \sum_{\mathbf{R}(\alpha)-\mathbf{R}(\beta)} \exp\{i\mathbf{k}(\mathbf{R}(\alpha) - \mathbf{R}(\beta))\} \gamma_{\alpha\beta}^{mn}(\mathbf{R}(\alpha) - \mathbf{R}(\beta)), \\ O_{\alpha}^m(\mathbf{k}) &= \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\mathbf{R}(\alpha)} O^m(\mathbf{R}(\alpha)) \exp(-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{R}(\alpha)). \end{aligned}$$

Здесь α и β — индексы подрешеток, $\alpha, \beta = 1, 2, 3, 4$, N — число элементарных ячеек в кристалле. Заметим, что совокупность операторов $\{O_i^m, J_i^z, \pm\}$ образует алгебру (см. таблицу). Поэтому удобно ввести следующие обозначения:

$$\begin{aligned} [O_i^m, O_j^n] &= K_{mn}(J_i) \delta_{ij}, \\ [J_i^m, O_j^n] &= L_{mn}(O_i) \delta_{ij}, \end{aligned} \quad (3)$$

$K_{mn}(J_i)$ и $L_{mn}(O_i)$ — некоторые функции соответственно операторов J_i^z, \pm и O_i^m , конкретный вид которых зависит от значений индексов m и n .

Запишем уравнения движения

$$i \frac{dO_{\alpha}^m(\mathbf{k})}{dt} = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\mathbf{q}, \beta} \sum_{m'n'} \gamma_{\alpha\beta}^{m'n'}(\mathbf{q}) \{K_{mm'}(J_{\alpha}(\mathbf{k} + \mathbf{q})) O_{\beta}^{n'}(-\mathbf{q}) + O_{\beta}^{n'}(-\mathbf{q}) K_{mm'}(J_{\alpha}(\mathbf{k} + \mathbf{q}))\}, \quad (4)$$

$$i \frac{dJ_{\alpha}^m(\mathbf{k})}{dt} = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\mathbf{q}, \beta} \sum_{m'n'} \gamma_{\alpha\beta}^{m'n'}(\mathbf{q}) \{L_{mm'}(O_{\alpha}(\mathbf{k} + \mathbf{q})) O_{\beta}^{n'}(-\mathbf{q}) + O_{\beta}^{n'}(-\mathbf{q}) L_{mm'}(O_{\alpha}(\mathbf{k} + \mathbf{q}))\}. \quad (5)$$

Линеаризуем эти уравнения, используя приближение хаотических фаз,

$$K_{mm'}(J_{\alpha}(\mathbf{k} + \mathbf{q})) O_{\beta}^{n'}(-\mathbf{q}) \approx K_{mm'}(J_{\alpha}(\mathbf{k} + \mathbf{q})) \langle O_{\beta}^{n'}(-\mathbf{q}) \rangle + \langle K_{mm'}(J_{\alpha}(\mathbf{k} + \mathbf{q})) \rangle O_{\beta}^{n'}(-\mathbf{q}), \quad (6)$$

$$L_{mm'}(O_{\alpha}(\mathbf{k} + \mathbf{q})) O_{\beta}^{n'}(-\mathbf{q}) \approx L_{mm'}(O_{\alpha}(\mathbf{k} + \mathbf{q})) \langle O_{\beta}^{n'}(-\mathbf{q}) \rangle + \langle L_{mm'}(O_{\alpha}(\mathbf{k} + \mathbf{q})) \rangle O_{\beta}^{n'}(-\mathbf{q}). \quad (7)$$

Учитывая результаты расчетов в приближении молекулярного поля, предполагаем далее (см. работы [3, 5])

$$\langle O_{\beta}^n(\mathbf{k}) \rangle = 0, \quad n \neq 0; \quad \langle J_{\beta}^n(\mathbf{k}) \rangle = 0. \quad (8)$$

Используя (6) — (8), преобразуем уравнения (4) и (5) к виду

$$i \frac{dO_{\alpha}^{\pm 1}(\mathbf{k})}{dt} \approx \mp \frac{19\Gamma}{2} J_{\alpha}^{\mp}(\mathbf{k}) \langle O^0 \rangle, \quad (9)$$

$$i \frac{dJ_{\alpha}^{\pm}(\mathbf{k})}{dt} = \mp \frac{19\Gamma}{2} \langle O^0 \rangle \left\{ O_{\alpha}^{\mp 1}(\mathbf{k}) + \frac{8}{19\Gamma} \sum_{\beta, n} \gamma_{\alpha\beta}^{\pm 1, n}(\mathbf{k}) O_{\beta}^n(\mathbf{k}) \right\}, \quad (10)$$

A \ B	O ⁰	O ⁺¹	O ⁻¹	O ⁺²	O ⁻²	J ⁺	J ⁻	J ^z
O ⁰	0	3J ⁺	-3J ⁻	0	0	3O ⁺¹	-3O ⁻¹	0
O ⁺¹	-3J ⁺	0	2J ^z	0	-2J ⁻	2O ⁺²	2O ⁰	-O ⁺¹
O ⁻¹	3J ⁻	-2J ^z	0	2J ⁺	0	-2O ⁰	-2O ⁻²	O ⁻¹
O ⁺²	0	0	-2J ⁺	0	4J ^z	0	2O ⁺¹	-2O ⁺²
O ⁻²	0	2J ⁻	0	-4J ^z	0	-2O ⁻¹	0	2O ⁻²
J ⁺	-3O ⁺¹	-2O ⁺²	2O ⁰	0	2O ⁻¹	0	2J ^z	-J ⁺
J ⁻	3O ⁻¹	-2O ⁰	2O ⁻²	-2O ⁺¹	0	-2J ^z	0	J ⁻
J ^z	0	O ⁺¹	-O ⁻¹	2O ⁺²	-2O ⁻²	J ⁺	-J ⁻	0

где введено обозначение

$$-\frac{19}{12} \Gamma = \sum_{\beta} \gamma_{\alpha\beta}^{00}(0).$$

Мы ограничились приближением ближайших соседей [4] (учет следующих соседей [25] не приводит к существенным изменениям).

Из (9) и (10) следует уравнение

$$\frac{d^2 J_{\alpha}^{\pm}(\mathbf{k})}{dt^2} = - \left(\frac{19\Gamma \langle O^0 \rangle}{2} \right)^2 \left\{ J_{\alpha}^{\mp}(\mathbf{k}) + \frac{8}{19\Gamma} \sum_{\beta} (\pm \gamma_{\alpha\beta}^{\pm 1, -1}(\mathbf{k}) J_{\beta}^{-}(\mathbf{k}) \mp \mp \gamma_{\alpha\beta}^{\pm 1, +1}(\mathbf{k}) J_{\beta}^{+}(\mathbf{k})) \right\}. \quad (11)$$

Введем обозначения (см. также [4])

$$f_{\alpha\beta}(\mathbf{k}) = \frac{4}{19\Gamma} \gamma_{\alpha\beta}^{+1, -1}(\mathbf{k}), \quad f_{\alpha\beta}^*(\mathbf{k}) = \frac{4}{19\Gamma} \gamma_{\alpha\beta}^{-1, +1}(\mathbf{k}),$$

$$g_{\alpha\beta}(\mathbf{k}) = \frac{4}{19\Gamma} \gamma_{\alpha\beta}^{+1, +1}(\mathbf{k}), \quad g_{\alpha\beta}^*(\mathbf{k}) = \frac{4}{19\Gamma} \gamma_{\alpha\beta}^{-1, -1}(\mathbf{k}),$$

$$\bar{C}(\mathbf{k}) = \begin{bmatrix} J_1^{-}(\mathbf{k}) \\ \vdots \\ J_4^{-}(\mathbf{k}) \\ J_1^{+}(\mathbf{k}) \\ \vdots \\ J_4^{+}(\mathbf{k}) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} c_1(\mathbf{k}) \\ \vdots \\ \vdots \\ \vdots \\ c_8(\mathbf{k}) \end{bmatrix}, \quad \bar{F}(\mathbf{k}) = \begin{bmatrix} \bar{f}(\mathbf{k}) & -\bar{g}(\mathbf{k}) \\ \vdots & \vdots \\ -\bar{g}^*(\mathbf{k}) & \bar{f}^*(\mathbf{k}) \end{bmatrix}, \quad (12)$$

а также

$$\bar{M}(\mathbf{k}) = \left(\frac{19\Gamma}{2} \langle O^0 \rangle \right)^2 [1 + 2\bar{F}(\mathbf{k})] \quad (13)$$

(здесь чертой сверху обозначены матричные величины).

Для вычисления корреляционных функций мы воспользуемся методом функций Грина [26].

Введем функцию Грина

$$\bar{G}(E, \mathbf{k}) = \langle\langle \bar{C}(\mathbf{k}) | \bar{C}^+(\mathbf{k}) \rangle\rangle_E,$$

уравнение для которой имеет вид

$$E^2 \bar{G}(E, \mathbf{k}) = \frac{i}{2\pi} \{E \langle [\bar{C}(\mathbf{k}), \bar{C}^+(\mathbf{k})] \rangle + \langle [[\bar{C}(\mathbf{k}), \mathcal{H}] \bar{C}^+(\mathbf{k})] \rangle + \bar{M}(\mathbf{k}) G(\mathbf{k}, E)\}. \quad (14)$$

Далее вводим диагоналирующую матрицу $\bar{V}(\mathbf{k})$; $\bar{V}^{-1}(\mathbf{k}) = \bar{V}^+(\mathbf{k})$,

$$\begin{aligned} \bar{V}^+(\mathbf{k}) \bar{M}(\mathbf{k}) \bar{V}(\mathbf{k}) &= \left(\frac{19\Gamma}{2} \langle O^0 \rangle\right)^2 [1 + 2\bar{V}^+(\mathbf{k}) \bar{F}(\mathbf{k}) \bar{V}(\mathbf{k})] = \\ &= \left(\frac{19\Gamma}{2} \langle O^0 \rangle\right)^2 [1 + 2\bar{\Phi}(\mathbf{k})] = \bar{\omega}^2(\mathbf{k}). \end{aligned} \quad (15)$$

Здесь $\bar{\omega}^2(\mathbf{k})$ — диагональная матрица с элементами

$$\omega_\mu^2(\mathbf{k}) = \left(\frac{19\Gamma}{2} \langle O^0 \rangle\right)^2 \varepsilon_\mu^2(\mathbf{k}), \quad \mu = 1, 2, \dots, 8;$$

$\varepsilon_\mu^2(\mathbf{k})$ — собственные значения матрицы $[1 + 2\bar{\Phi}(\mathbf{k})]$; $\omega_\mu(\mathbf{k})$ — частоты либронов, которые, как и матрицу $\bar{V}(\mathbf{k})$, надо искать численным образом. Оценки показывают [2—4], что для $k = 0$ и $T = 0^\circ \text{K}$ энергетическая щель в спектре либронов порядка 10°K , а ширина либронной зоны порядка $4 \div 5^\circ \text{K}$. Теперь нетрудно получить уравнения для функций Грина от операторов $J^\pm(\mathbf{k})$. Запишем для примера одно из них

$$\langle \langle J_\alpha^+(\mathbf{k}) | J_\alpha^-(\mathbf{-k}) \rangle \rangle_E = \frac{i}{2\pi} \sum_\lambda |V_{\alpha\lambda}(\mathbf{k})|^2 \frac{\omega_\lambda^2(\mathbf{k})}{E^2 - \omega_\lambda^2(\mathbf{k})}.$$

Проводя стандартные вычисления [26], найдем выражения для спектральных интенсивностей корреляционных функций, которые обозначим

$$I_{J_\alpha^+(\mathbf{k}) J_\alpha^-(\mathbf{-k})}(\omega) = I_{J^+ J^-}(\omega, \mathbf{k}, \alpha).$$

Имеем

$$I_{J^+ J^+}(\omega, \mathbf{k}, \alpha) = \frac{2}{19\Gamma} \sum_\lambda (V_{\alpha\lambda}^*(\mathbf{k}))^2 \omega_\lambda(\mathbf{k}) \left\{ \frac{\delta(\omega - \omega_\lambda(\mathbf{k}))}{e^{\beta\omega} - 1} - \frac{\delta(\omega + \omega_\lambda(\mathbf{k}))}{e^{\beta\omega} - 1} \right\}, \quad (16)$$

$$I_{J^+ J^-}(\omega, \mathbf{k}, \alpha) = \frac{2}{19\Gamma} \sum_\lambda |V_{\alpha\lambda}(\mathbf{k})|^2 \omega_\lambda(\mathbf{k}) \left\{ \frac{\delta(\omega - \omega_\lambda(\mathbf{k}))}{e^{\beta\omega} - 1} - \frac{\delta(\omega + \omega_\lambda(\mathbf{k}))}{e^{\beta\omega} - 1} \right\}. \quad (17)$$

Эти спектральные интенсивности потребуются ниже при вычислении времени релаксации.

Получим также уравнение для так называемого «параметра упорядочения» $\langle O^0 \rangle$, для чего воспользуемся соотношениями $J^- J^+ + J^+ J^- = 2(|J|^2 - (J^z)^2)$ и (1а).

Имеет место равенство

$$\frac{2}{4N} \sum_{\alpha, \mathbf{k}} \int_{-\infty}^{\infty} I_{J^+ J^-}(\omega, \mathbf{k}, \alpha) d\omega = \frac{2}{3} (4 - \langle O^0 \rangle).$$

С использованием (17) получим

$$\langle O^0 \rangle = 4 - \frac{3}{2} \langle O^0 \rangle \frac{1}{N_0} \sum_{\lambda, \mathbf{k}} \varepsilon_\lambda(\mathbf{k}) \text{cth} \beta \frac{19\Gamma}{4} \langle O^0 \rangle \varepsilon_\lambda(\mathbf{k}), \quad (18)$$

$N_0 = 4N$ — число молекул ортоводорода в кристалле. Наш результат соответствует аналогичному уравнению работы [3], но отличается от соответ-

ствующего уравнения Раича и Эттерса [4]. По-видимому, это связано с тем, что для исследования либронной подсистемы они переходили от операторов J^z, \pm к некоторым другим операторам, корреляционные функции которых вычислялись на основе статистического метода Уоллеса (см. работу [4]).

Полагая в уравнении (18) $\omega_n(k) = 1$, получаем известные результаты теории молекулярного поля [5]. Результаты работ [3, 4] и настоящей работы, по-видимому, близки, так как во всех работах выражение для $\langle O^0 \rangle$, вычисленное при $T = 0^\circ \text{K}$, отличается всего на несколько процентов от результатов, полученных в приближении молекулярного поля.

3. ВЫВОД ВЫРАЖЕНИЯ ДЛЯ ОБРАТНОГО ВРЕМЕНИ ПРОДОЛЬНОЙ ЯДЕРНОЙ СПИН-РЕШЕТОЧНОЙ РЕЛАКСАЦИИ

Принимая во внимание механизм релаксации, обсуждавшийся в разделе 1, запишем гамильтониан молекулы ортоводорода во внешнем статическом магнитном поле H_0 следующим образом [12]:

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_s + V, \quad V = \mathcal{H}_{dd} + \mathcal{H}_{I,J}. \quad (19)$$

Здесь $\mathcal{H}_s = -aI^z - bJ^z$ — зеемановский гамильтониан; $\mathbf{I} = \mathbf{I}^{(1)} + \mathbf{I}^{(2)}$ — оператор полного ядерного спина молекулы ортоводорода; $\mathcal{H}_{I,J} = -c \cdot \mathbf{I} \cdot \mathbf{J}$ — гамильтониан $\mathbf{I} \cdot \mathbf{J}$ -взаимодействия;

$$\mathcal{H}_{dd} = -5d \left\{ 3 \frac{\mathbf{I}^{(1)} \cdot \mathbf{r}}{r} \cdot \frac{\mathbf{I}^{(2)} \cdot \mathbf{r}}{r} - \mathbf{I}^{(1)} \cdot \mathbf{I}^{(2)} \right\} \quad (20)$$

— гамильтониан внутримолекулярного диполь-дипольного взаимодействия ядерных спинов протонов в молекуле, r — расстояние между ними. Используются обозначения

$$a = 2\mu_i H_0, \quad b = \frac{\mu_J}{J} H_0, \\ c = 2\mu_i H', \quad d = \frac{4}{5} \mu_i^2 \langle r^{-3} \rangle$$

(определение и численное значение которых см. в работе [12]).

Гамильтониан (19) определяет структуру линии ядерного магнитного резонанса в твердом водороде и приводит к релаксационным процессам. Его удобно представить в виде

$$V = -d \cdot \mathbf{J}^2 \mathbf{I}^2 - \left(c - \frac{3}{2} d \right) \mathbf{I} \cdot \mathbf{J} + 3d (\mathbf{I} \cdot \mathbf{J})^2. \quad (21)$$

Используя метод неравновесного статистического оператора Д. Н. Зубарева [28], можно показать [27], что вероятности переходов между состояниями с различными $I^z = m$ представимы в виде спектральных интенсивностей корреляционных функций только операторов решетки. Мы предполагаем, что состояние спиновой системы характеризуется спиновой температурой β_s . Тогда время продольной спин-решеточной релаксации опреде-

ляется следующим образом:

$$\frac{d\beta_s}{dt} = \frac{\beta - \beta_s}{T_1},$$

$$\frac{1}{T_1} = \frac{1}{2} \frac{\sum_{m, m_1} (m - m_1)^2 W_{m \rightarrow m_1}}{\sum_m m^2}, \quad (22)$$

где $-1 \leq m, m_1 \leq 1$ и $W_{m \rightarrow m_1}$ — вероятности переходов, выраженные через спектральные интенсивности. Следуя методу работы [27], представим выражение (22) в виде

$$\frac{1}{T_1} = \frac{2\pi}{N} \sum_{\mathbf{R}(\alpha)} \left\{ \frac{9}{8} d^2 \langle O^{-1}(\mathbf{R}(\alpha)) | O^1(\mathbf{R}(\alpha)) \rangle_a + \right.$$

$$\left. + \frac{9}{2} d^2 \langle O^{-2}(\mathbf{R}(\alpha)) | O^{+2}(\mathbf{R}(\alpha)) \rangle_{2a} + \frac{c^2}{2} \langle J^-(\mathbf{R}(\alpha)) | J^+(\mathbf{R}(\alpha)) \rangle_a \right\}. \quad (23)$$

Здесь $\langle \dots | \dots \rangle_a$ — фурье-образ по времени соответствующей корреляционной функции, взятый в точке $\omega = a$. Поскольку a очень мало по сравнению с энергиями либронов, в дальнейшем его можно будет считать равным нулю.

Полученное выражение (23) записано в системе координат, связанной с внешним магнитным полем. Заметим, что его можно свести к выражению, применявшемуся в работе [12]. Для вычисления времени релаксации ниже точки фазового перехода запишем соотношение (24) в подрешеточной системе координат

$$\frac{1}{T_1} = \frac{2\pi}{N} \sum_{\mathbf{R}(\alpha)} \left\{ \frac{9}{2} d^2 \sum_{m, n=-2}^2 \left[R_{n, m}^{+2, -2} \langle O^m(\mathbf{R}(\alpha)) | O^n(\mathbf{R}(\alpha)) \rangle_{2a} + \right. \right.$$

$$\left. + \frac{1}{4} R_{n, m}^{+1, -1} \langle O^m(\mathbf{R}(\alpha)) | O^n(\mathbf{R}(\alpha)) \rangle_a \right] +$$

$$\left. + \frac{c^2}{2} \sum_{m, n=-1}^1 T_{n, m}^{+1, -1} \langle J^m(\mathbf{R}(\alpha)) | J^n(\mathbf{R}(\alpha)) \rangle_a \right\}. \quad (24)$$

Здесь введены обозначения

$$R_{nm}^{n'm'}(\alpha) = \frac{A_n A_m}{A_{n'} A_{m'}} D_{nn'}^{2*}(\varphi_\alpha, \theta_\alpha, 0) D_{mm'}^{2*}(\varphi_\alpha, \theta_\alpha, 0),$$

$$m, n = \pm 2, \pm 1, 0,$$

$$A_0 = -\frac{1}{5} \left(\frac{5}{4\pi} \right)^{1/2}, \quad A_{\pm 1} = \pm \frac{1}{10} \left(\frac{15}{2\pi} \right)^{1/2}, \quad A_{\pm 2} = -\frac{1}{10} \left(\frac{15}{2\pi} \right)^{1/2};$$

$$T_{nm}^{n'm'}(\alpha) = \frac{B_n B_m}{B_{n'} B_{m'}} D_{nn'}^{1*}(\varphi_\alpha, \theta_\alpha, 0) D_{mm'}^{1*}(\varphi_\alpha, \theta_\alpha, 0),$$

$$m, n = \pm 1, 0,$$

$$B_0 = \left(\frac{3}{4\pi} \right)^{1/2}, \quad B_{\pm 1} = \mp \left(\frac{3}{4\pi} \right)^{1/2} \frac{1}{\sqrt{2}},$$

θ_α и φ_α — аксиальный и азимутальный углы оси квантования в подрешетке α .

4. ВЫЧИСЛЕНИЕ ВРЕМЕНИ СПИН-РЕШЕТОЧНОЙ РЕЛАКСАЦИИ НИЖЕ ТОЧКИ ФАЗОВОГО ПЕРЕХОДА

Вычисление входящих в уравнение (24) спектральных интенсивностей корреляционных функций на основе приближения хаотических фаз, развитого в разделе 2, затруднительно. Трудности здесь того же рода, что и при вычислении корреляционной функции типа «плотность-плотность» в модели Гайзенберга. Запишем сначала выражение (24) в виде

$$\frac{1}{T_1} = \frac{2\pi}{N} \sum_{\mathbf{k}, \alpha} \left\{ \frac{9d^2}{2} \sum_{m, n=\pm 2, 0} \left[R_{m, n}^{+2, -2}(\alpha) + \frac{1}{4} R_{m, n}^{+1, -1}(\alpha) \right] \times \right. \\ \left. \times \langle O_{\alpha}^n(\mathbf{k}) | O_{\alpha}^m(-\mathbf{k}) \rangle_{\omega=0} + T_{00}^{+1, -1} \frac{c^2}{2} \langle J_{\alpha}^z(\mathbf{k}) | J_{\alpha}^z(-\mathbf{k}) \rangle_{\omega=0} \right\}. \quad (25)$$

Все спектральные интенсивности с $m, n = \pm 1$ опущены, поскольку они не ответственны за рамановские процессы. Для вычисления входящих в это выражение спектральных интенсивностей мы применяем приближение следующего типа. Рассмотрим, например, $\langle O_{\alpha}^{-2}(\mathbf{k}) | O_{\alpha}^{+2}(-\mathbf{k}) \rangle_{\omega=0}$

$$\frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \int_{-\infty}^{\infty} \langle O_{\alpha}^{-2}(\mathbf{k}) O_{\alpha}^{+2}(-\mathbf{k}, t) \rangle dt = \\ = \frac{1}{N^2} \sum_{\mathbf{k}} \sum_{\mathbf{q}, \mathbf{q}_1} \int_{-\infty}^{\infty} \langle J_{\alpha}^{-}(\mathbf{k}-\mathbf{q}) J_{\alpha}^{-}(\mathbf{q}) J_{\alpha}^{+}(-\mathbf{k}-\mathbf{q}_1, t) J_{\alpha}^{+}(\mathbf{q}_1, t) \rangle dt \approx \\ \approx \frac{2}{N^2} \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{q}} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega I_{J^{+}J^{-}}(-\omega, \mathbf{k}-\mathbf{q}, \alpha) I_{J^{+}J^{-}}(\omega, \mathbf{q}, \alpha), \quad (26)$$

т. е. мы будем пренебрегать теми четверными корреляторами от операторов J^{\pm} , которые не выражаются через парные. Вычислим еще для примера $\langle O_{\alpha}^0(\mathbf{k}) O_{\alpha}^0(-\mathbf{k}) \rangle_{\omega=0}$

$$\frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \int_{-\infty}^{\infty} \langle O_{\alpha}^0(\mathbf{k}) O_{\alpha}^0(-\mathbf{k}, t) \rangle dt \approx \frac{9}{N^2} \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{q}} \left\{ \int_{-\infty}^{\infty} d\omega I_{J^{+}J^{-}}(-\omega, \mathbf{k}-\mathbf{q}, \alpha) \times \right. \\ \left. \times I_{J^{+}J^{-}}(\omega, \mathbf{q}, \alpha) + \int_{-\infty}^{\infty} d\omega I_{J^{+}J^{-}}(-\omega, \mathbf{k}-\mathbf{q}, \alpha) I_{J^{+}J^{+}}(\omega, \mathbf{q}, \alpha) \right\}. \quad (27)$$

Все входящие в выражение (25) корреляционные функции можно представить в виде четверных корреляторов от операторов J^{\pm} и расцепить по типу (26), (27).

Приведем для примера одно выражение для свертки спектральных интенсивностей:

$$\sum_{\mathbf{k}, \mathbf{q}} \int_{-\infty}^{\infty} I_{J^{+}J^{-}}(-\omega, \mathbf{k}-\mathbf{q}, \alpha) I_{J^{+}J^{-}}(\omega, \mathbf{q}, \alpha) d\omega = \\ = \frac{4}{(19\Gamma)^2} \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{q}} \sum_{\lambda, \lambda'} |V_{\alpha\lambda}(\mathbf{k}-\mathbf{q})|^2 |V_{\alpha\lambda'}(\mathbf{q})|^2 \times \\ \times \frac{[e^{i\omega\lambda'(\mathbf{q})} + e^{i\omega\lambda(\mathbf{k}-\mathbf{q})}] \omega_{\lambda}(\mathbf{k}-\mathbf{q}) \omega_{\lambda'}(\mathbf{q})}{(e^{i\omega\lambda(\mathbf{k}-\mathbf{q})} - 1)(e^{i\omega\lambda'(\mathbf{q})} - 1)} \delta(\omega_{\lambda}(\mathbf{k}-\mathbf{q}) - \omega_{\lambda'}(\mathbf{q})). \quad (28)$$

Введем обозначения $\mathbf{k} - \mathbf{q} = \mathbf{k}$; $\mathbf{q} = \mathbf{k}_1$; $z = -\frac{19\Gamma}{2} \langle O^0 \rangle$. Совершим замену

$$\frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \rightarrow \frac{\Omega}{(2\pi)^3} \int_{\Omega^*} d^3\mathbf{k},$$

где Ω^* — объем первой зоны Бриллюэна, Ω — объем элементарной ячейки.

Тогда (28) переписывается в виде

$$- \frac{2}{19\Gamma} \langle O^0 \rangle \frac{\Omega^2}{(2\pi)^6} \int_{\Omega^*} d^3\mathbf{k} d^3\mathbf{k}_1 \sum_{\lambda\lambda'} |V_{\alpha\lambda}(\mathbf{k})|^2 |V_{\alpha\lambda'}(\mathbf{k}_1)|^2 F_{\lambda\lambda'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_1), \quad (29)$$

где введено обозначение

$$F_{\lambda\lambda'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_1) = \frac{(e^{\beta z \varepsilon_{\lambda}(\mathbf{k})} + e^{\beta z \varepsilon_{\lambda'}(\mathbf{k}_1)}) \varepsilon_{\lambda}(\mathbf{k}) \varepsilon_{\lambda'}(\mathbf{k}_1)}{(e^{\beta z \varepsilon_{\lambda}(\mathbf{k})} - 1)(e^{\beta z \varepsilon_{\lambda'}(\mathbf{k}_1)} - 1)} \delta[\varepsilon_{\lambda}(\mathbf{k}) - \varepsilon_{\lambda'}(\mathbf{k}_1)]. \quad (30)$$

Вычисляя входящие в соотношение (25) спектральные интенсивности по типу (26), (27) и записывая соответствующие свертки по типу (29), представим выражение (25) в виде

$$\frac{1}{T_1} = \frac{18\pi d^2}{19\Gamma} |\langle O^0 \rangle| \frac{\Omega^2}{(2\pi)^6} \sum_{\lambda, \lambda'} \int_{\Omega^*} d^3\mathbf{k} d^3\mathbf{k}_1 G_{\lambda\lambda'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_1) F_{\lambda\lambda'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_1). \quad (31)$$

Величина $G_{\lambda\lambda'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_1)$ зависит от элементов матриц \bar{R} и \bar{V} (см. приложение), и следовательно, от структуры решетки. Для того чтобы явно выделить температурный фактор, будем предполагать, что можно пренебречь зависимостью $G_{\lambda\lambda'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_1)$ от \mathbf{k} и \mathbf{k}_1 . Вводя плотности спектра (см. также [13])

$$g_{\lambda}(\varepsilon) = \frac{\Omega}{(2\pi)^3} \int_{\varepsilon_{\lambda}(\mathbf{k})=\varepsilon} \frac{dS}{|\nabla_{\mathbf{k}} \varepsilon_{\lambda}(\mathbf{k})|},$$

получим окончательно

$$\frac{1}{T_1} = \frac{18\pi d^2}{19\Gamma} |\langle O^0 \rangle| \sum_{\lambda\lambda'} G_{\lambda\lambda'} F_{\lambda\lambda'}(\beta), \quad (32)$$

где

$$F_{\lambda\lambda'}(\beta) = 2 \int_{\varepsilon_{\min}}^{\varepsilon_{\max}} \frac{d\varepsilon e^{\beta z \varepsilon}}{(e^{\beta z \varepsilon} - 1)^2} \varepsilon^2 g_{\lambda}(\varepsilon) g_{\lambda'}(\varepsilon),$$

($\varepsilon_{\max} - \varepsilon_{\min}$) — ширина зоны либронных волн и $G_{\lambda\lambda'}$ — фактор, связанный со структурой решетки.

5. ОБСУЖДЕНИЕ

Полученные нами выражения для обратного времени продольной ядерной спин-решеточной релаксации в твердом ортоводороде, записанные в терминах спектральных интенсивностей, очень удобны при рассмотрении релаксационных проблем. Вычисленное соотношение для времени релаксации (31) позволяет рассматривать этот процесс в более широком интервале температур, чем в работе Хоммы [13]. Оценки порядка величины времени релаксации согласуются с [13]. Наши результаты основаны на ряде упрощающих предположений, как например, (26), (27) и поэтому они носят качественный характер.

В дальнейшем предполагается провести некоторые численные расчеты и оценки.

Отметим, наконец, что полученные нами результаты в разделе 2 позволяют предложить очень удобный и достаточно простой способ для рассмотрения либронной подсистемы на основе приближения хаотических фаз.

В заключение мы хотели бы поблагодарить Д. Н. Зубарева и Н. М. Плакиду за помощь в работе. Мы благодарны Б. В. Васильеву и В. Б. Приезжеву за обсуждения.

ПРИЛОЖЕНИЕ

Точное выражение для величины $G_{\lambda\lambda'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_1)$ имеет вид

$$\begin{aligned}
 G_{\lambda\lambda'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_1) = & \sum_{\alpha} \left\{ 2 \left[R_{+2, -2}^{+2, -2}(\alpha) + \frac{1}{4} R_{+2, +2}^{+1, -1}(\alpha) \right] (V_{\alpha\lambda}^{*2}(\mathbf{k}) V_{\alpha\lambda'}^{*2}(\mathbf{k}_1) + \right. \\
 & + V_{\alpha\lambda}^2(\mathbf{k}) V_{\alpha\lambda'}^2(\mathbf{k}_1)) + 9 \left[R_{0, 0}^{+2, -2}(\alpha) + \frac{1}{4} R_{0, 0}^{+1, -1}(\alpha) \right] (V_{\alpha\lambda}^{*2}(\mathbf{k}) V_{\alpha\lambda'}^2(\mathbf{k}_1)) + \\
 & + \left[2R_{+2, -2}^{+2, -2}(\alpha) + 2R_{-2, +2}^{+2, -2}(\alpha) + 9R_{0, 0}^{+2, -2}(\alpha) + \frac{1}{2} R_{+2, -2}^{+1, -1}(\alpha) + \right. \\
 & \left. + \frac{1}{2} R_{-2, +2}^{+1, -1}(\alpha) + \frac{9}{4} R_{0, 0}^{+1, -1}(\alpha) \right] (|V_{\alpha\lambda}(\mathbf{k})|^2 |V_{\alpha\lambda'}(\mathbf{k}_1)|^2) - \\
 & - 6 \left[R_{+2, 0}^{+2, -2}(\alpha) + R_{0, +2}^{+2, -2}(\alpha) + \frac{1}{4} R_{2, 0}^{+1, -1}(\alpha) + \frac{1}{4} R_{0, +2}^{+1, -1}(\alpha) \right] \times \\
 & \left. \times (V_{\alpha\lambda}^{*2}(\mathbf{k}) |V_{\alpha\lambda'}(\mathbf{k}_1)|^2 + V_{\alpha\lambda}^2(\mathbf{k}) |V_{\alpha\lambda'}(\mathbf{k}_1)|^2) \right\}.
 \end{aligned}$$

Мы воспользовались легко проверяемыми свойствами матриц \bar{R} .

Объединенный институт
ядерных исследований

Поступила в редакцию
30 января 1970 г.

Литература

- [1] T. Nakamura. Progr. Theor. Phys., **14**, 135, 1955.
- [2] S. Homma, K. Okada, H. Matsuda. Progr. Theor. Phys., **38**, 767, 1967.
- [3] T. Matsubara, H. Ueyama. Progr. Theor. Phys., **38**, 784, 1967.
- [4] J. C. Raich, R. D. Etters. Phys. Rev., **168**, 425, 1968.
- [5] J. C. Raich, R. D. Etters. Phys. Rev., **155**, 457, 1967.
- [6] J. C. Raich, R. D. Etters. J. Phys. Chem. Solids, **29**, 1561, 1968.
- [7] К. Валясек. Препринт Р4-4182, ОИЯИ, 1968.
- [8] A. B. Harris. Solid St. Commun., **6**, 149, 1968.
- [9] R. A. Tahir-Kheli. Solid St. Commun., **6**, 579, 1968.
- [10] W. N. Hardy, I. F. Silvera, I. P. McTague. Phys. Rev. Lett., **22**, 297, 1969.
- [11] S. Homma, H. Matsuda. Progr. Theor. Phys., **40**, 1191, 1968.
- [12] T. Moriya, K. Motizuki. Prog. Theor. Phys., **18**, 183, 1957.
- [13] S. Homma. Prog. Theor. Phys., **40**, 1, 1968.
- [14] A. B. Harris, E. Hunt. Phys. Rev. Lett., **16**, 845, 1966.
- [15] M. J. Smith, D. White, I. R. Gaines. J. Chem. Phys., **49**, 3317, 1968.
- [16] L. I. Amstutz, H. Meyer, S. M. Myers, D. C. Rorer. Phys. Rev., **181**, 589, 1969.
- [17] J. Van Kranendonk, G. Karl. Rev. Mod. Phys., **40**, 531, 1968.
- [18] C. C. Sung. Phys. Rev., **167**, 271, 1968.
- [19] C. C. Sung. Phys. Rev., **177**, 435, 1969.
- [20] C. C. Sung. Solid St. Commun., **6**, 93, 1968.
- [21] J. C. Raich, H. M. James. Phys. Rev. Lett., **16**, 173, 1966.
- [22] H. M. James, J. C. Raich. Phys. Rev., **162**, 649, 1967.

- [23] O. Nagai, T. Nakamura. Prog. Theor. Phys., 24, 432, 1960.
[24] I. Felsteiner. Phys. Rev. Lett., 15, 1025, 1965.
[25] A. J. Berlinsky, A. B. Harris, C. F. Coll. Solid St. Commun., 7, 1491, 1969.
[26] С. В. Тябликов. Методы квантовой теории магнетизма, «Наука», 1965.
[27] K. Walasek, A. L. Kuzemsky. Preprint E4-4862, JINR, 1970.
[28] Д. Н. Зубарев. ДАН СССР, 140, 92, 1964; ТМФ, 1, 137, 1969.
-

THEORY OF THE NUCLEAR SPIN-LATTICE RELAXATION IN SOLID ORTHOHYDROGEN

K. Walasek, A. L. Kuzemsky

An expression for the time of the longitudinal nuclear spin-lattice relaxation written in the terms of the spectral intensities of the correlation functions is obtained. The libron subsystem is taken as the lattice. The correlation functions of the libron subsystem are calculated in random phase approximation.
