УДК 537.312.62, 541.124

СТОХАСТИЧЕСКАЯ ДОМЕННАЯ СТРУКТУРА В СИСТЕМЕ РЕКОМБИНИРУЮЩИХ СПИНОВ

А. А. Овчинников, К. А. Пронин

Для экспериментального изучения предложена система, в которой на поверхности подложки в падающем потоке атомов водорода образуется доменная структура адсорбированных спинов. Явление имеет флуктуационную природу и связано с конкуренцией процессов диффузии, аннигиляции, спиновой релаксации и стохастической подкачки. Теоретически рассмотрены как стационарный режим, так и процесс выхода на него и релаксация после выключения источника.

В недавних работах [1-5] (см. также [6-9]) было исследовано явление стохастической агрегации реагирующих частиц. Было показано, что в двухкомпонентной системе диффундирующих реагентов равных концентраций, гибнущих при контакте, под действием стационарного источника образуются флуктуационным образом преимущественные скопления частиц одного сорта. В низкоразмерных системах с пуассоновским рождением частиц масштабы возникающих доменов сравнимы с размерами всей системы. Это явление изменяет долговременную асимптотику релаксации концентрации после выключения источника по сравнению со случаем пуассоновских начальных флуктуаций плотности. В настоящей работе мы предлагаем экспериментальную реализацию эффекта агрегации в спиновой системе.

Пусть на плоскость (подложку) падает поток атомов водорода, причем все ориентации спинов неспаренных электронов и ядерных спинов будем считать равновероятными — приложенное магнитное поле исчезающе мало. В эволюционных уравнениях это описывается введением пуассоновских источников $I(\mathbf{x}, t)$, $\langle I\rangle = I_0$ с двумя индексами, первый из которых указывает проекцию спина неспаренного электрона, второй — протона. Концентрацию частиц на плоскости будем обозначать $c(\mathbf{x}, t)$ с аналогичными индексами. Адсорбированные на поверхности атомы диффундируют с одинаковыми коэффициентами диффузии $D \sim 10^5$ см$^2\cdot$с$^{-1}$, а при встрече частиц с противоположно направленными электронными спинами образуется молекула H_2 в основном синглетном состоянии, которая выбывает из игры. Аннигиляция происходит при сближении частиц до некоторого радиуса r_a, который мы считаем наименьшим пространственным масштабом задачи и всюду, где возможно, осуществляем предельный переход $r_a \to 0$. Сверхтонкое взаимодействие (СТВ) спинов электрона и ядра смешивает состояния $\uparrow\downarrow$ и $\downarrow\uparrow$, причем мы будем считать этот процесс релаксационным. Соответствующая (мономолекулярная) константа скорости k_m — порядка константы СТВ ($k_m \sim 10^{19}$ с$^{-1}$). Обменное взаимодействие при сближении атомов приводит к изменению ориентаций спинов электронов с (бимолекулярной) константой скорости $k_e \sim 10^{13}$ с$^{-1}$. И наконец, спин-решеточная релаксация уравнивает заселенности электронных спиновых состояний за характерное время $k_s^{-1} \sim$ $\sim 10^{-6}$ с. Указанные процессы приводят к следующим эволюционным уравнениям, относящимся к точке $(\mathbf{x}, t)$:

$$(\partial/\partial t)\, c_{\uparrow\uparrow} = D\Delta c_{\uparrow\uparrow} - k_a c_{\uparrow\uparrow}(c_{\downarrow\uparrow} + c_{\downarrow\downarrow}) - k_e(c_{\uparrow\uparrow}c_{\downarrow\downarrow} - c_{\uparrow\downarrow}c_{\downarrow\uparrow}) - \\ - k_s(c_{\uparrow\uparrow} - c_{\downarrow\uparrow}) + I_{\uparrow\uparrow}, \qquad (1а)$$

$$(\partial/\partial t)\, c_{\uparrow\downarrow} = D\Delta c_{\uparrow\downarrow} - k_a c_{\uparrow\downarrow}(c_{\downarrow\uparrow} + c_{\downarrow\downarrow}) - k_e(c_{\uparrow\downarrow}c_{\downarrow\uparrow} - c_{\uparrow\uparrow}c_{\downarrow\downarrow}) - k_m(c_{\uparrow\downarrow} - c_{\downarrow\uparrow}) - \\ - k_s(c_{\uparrow\downarrow} - c_{\downarrow\downarrow}) + I_{\uparrow\downarrow}, \qquad (1б)$$

и двум другим, получающимся из (1а), (1б) заменой индексов на противоположные.

Наиболее быстрым и эффективным каналом переходов между спиновыми состояниями является конверсия за счет СТВ. В соответствующем предельном случае имеем $c_{\uparrow\downarrow}(\mathbf{x}, t) = c_{\downarrow\uparrow}(\mathbf{x}, t)$ и, вводя суммарную концентрацию атомов с положительной проекцией электронного спина $s_\uparrow(\mathbf{x}, t) = c_{\uparrow\uparrow}(\mathbf{x}, t) + c_{\uparrow\downarrow}(\mathbf{x}, t)$, получаем уравнения

$$(\partial/\partial t)\, s_\uparrow = D\Delta s_\uparrow - k_a s_\uparrow s_\downarrow - k(s_\uparrow - s_\downarrow) + I_\uparrow, \qquad (2а)$$

$$(\partial/\partial t)\, s_\downarrow = D\Delta s_\downarrow - k_a s_\uparrow s_\downarrow - k_s(s_\downarrow - s_\uparrow) + I_\downarrow, \qquad (2б)$$

в которые обменное взаимодействие уже не входит.

Плотность магнитного момента пропорциональна разности концентраций спинов

$$z(\mathbf{x}, t) = s_\uparrow(\mathbf{x}, t) - s_\downarrow(\mathbf{x}, t) = c_{\uparrow\uparrow}(\mathbf{x}, t) - c_{\downarrow\downarrow}(\mathbf{x}, t). \qquad (3)$$

Уравнение для z получаем вычитанием (2б) из (2а) и с его помощью находим уравнение для корреляционной функции $\langle z(\mathbf{x}, t)\, z(\mathbf{x}', t)\rangle$. Если источник действовал в течение времени T при нулевых начальных условиях, решение последнего имеет вид (мы приведем результаты для всех размерностей d)

$$\langle z(\mathbf{x}, t)\, z(\mathbf{x}', t)\rangle = \frac{I_0}{4\pi D\Delta x}\exp\left(-\frac{\Delta x}{r_s}\right) - \frac{I_0}{8\pi D\Delta x}\left[\exp\left(\frac{\Delta x}{r_s}\right)\operatorname{erfc}\left(2\sqrt{k_sT} + \right.\right. \\ \left.\left. + \frac{\Delta x}{2\sqrt{2DT}}\right) - \exp\left(-\frac{\Delta x}{r_s}\right)\operatorname{erfc}\left(2\sqrt{k_sT} - \frac{\Delta x}{2\sqrt{2DT}}\right)\right], \quad d = 3, \qquad (4)$$

$$\langle z(\mathbf{x}, t)\, z(\mathbf{x}', t)\rangle = \frac{I_0}{2\sqrt{2k_sD}}\exp\left(-\frac{\Delta x}{r_s}\right) - \frac{I_0}{4\sqrt{2k_sD}}\left[\exp\left(\frac{\Delta x}{r_s}\right)\operatorname{erfc}\left(2\sqrt{k_sT} + \right.\right. \\ \left.\left. + \frac{\Delta x}{2\sqrt{2DT}}\right) + \exp\left(-\frac{\Delta x}{r_s}\right)\operatorname{erfc}\left(2\sqrt{k_sT} - \frac{\Delta x}{2\sqrt{2DT}}\right)\right], \quad d = 1. \qquad (5)$$

Первые слагаемые в (4), (5) дают стационарное значение коррелятора при $T \to \infty$. Положительная корреляция z описывает явление сегрегации — образование преимущественных скоплений сонаправленных спинов. Учет спин-решеточной релаксации приводит к появлению экспоненциального фактора, обрезающего корреляции на радиусе «экранирования» $r_s = (D/2\,k_s)^{1/2}$. Как и должно быть, чем быстрее процессы релаксации спинов, тем меньше радиус экранировки, и чем меньше коэффициент диффузии, тем больше плотность спинов в доменах и меньше их размер. Наименьшее значение, которое может принимать Δx, равно радиусу аннигиляции r_a, поэтому на малых расстояниях стационарный коррелятор (4) обрезается на значении I_0/k_d, $k_d = 4\pi D r_a$; в силу условия $r_a \ll r_s$ экспоненциальные факторы при этом обратятся в единицу. Отметим, что переход к пределу $D \to 0$ (фактически достаточно $D \lesssim k_s r_a^2$) здесь неинтересен, так как при $r_s \to 0$ или будет нарушено условие $r_a \ll r_s$ (физически пространственный масштаб изменения корреляционной функции плотностей не может быть меньше размера частицы), или же, если считать, что и $r_a \to 0$, дело сводится к изменению пространственного масштаба, что не дает новых эффектов.

Вторые слагаемые в (4), (5) описывают зависимость плотностей нескомпенсированных магнитных моментов от времени действия источника. В физически интересном режиме длительного воздействия $k_sT \gg 1$ и для расстояний Δx порядка нескольких радиусов экранирования r_s соответствующие поправки имеют вид

$$-\alpha_d \frac{I_0 \exp(-4k_sT)}{k_s (DT)^{d/2}}\left[1-\frac{1}{8k_sT}-\frac{\Delta x^2}{8DT}+\ldots\right], \tag{6}$$

где $\alpha_3 = 2^{-11/2}\pi^{-3/2}$, $\alpha_1 = 2^{-5/2}\pi^{-1/2}$.

Таким образом, основная зависимость от времени действия источника — экспоненциальная с характерным масштабом k_s^{-1}, т. е. для реальных ситуаций поправка, как правило, весьма мала.

В двумерном случае, представляющем для нас основной интерес, результат при длительном воздействии источника $k_sT \gg 1$ определяется выражением

$$\langle z(\mathrm{x}, t)\, z(\mathrm{x}', t)\rangle = \frac{I_0}{2\pi D} K_0\left(\frac{\Delta x}{r_s}\right) -$$
$$-\frac{I_0 \exp(-4k_sT)}{16\pi k_s DT}\left[1-\frac{1}{4k_sT}-\frac{\Delta x^2}{8DT}+\ldots\right], \tag{7}$$

где K_0 — функция Макдональда.

На малых расстояниях $r_a \leqslant \Delta x \leqslant r_s$ стационарная корреляционная функция, характеризуемая первым слагаемым в (7), растет логарифмически

$$I_0 (2\pi D)^{-1} [\ln (2r_s/\Delta x) - \gamma] \tag{8а}$$

(γ — постоянная Эйлера), а на больших ($\Delta x \gg r_s$) — убывает экспоненциально

$$I_0 \exp(-\Delta x/r_s)/2^{7/4}\pi^{1/2}k_s^{1/4}D^{3/4}\Delta x^{1/2}. \tag{8б}$$

Приведенное выше обсуждение справедливо и в этом случае. Отметим, что без учета спин-решеточной релаксации в низкоразмерных системах корреляционные функции (5), (7) при $T \to \infty$ обращаются в бесконечность — размер доменов порядка размеров всей системы. Принимая во внимание медленную релаксацию, приходим к конечным величинам с ограниченным радиусом корреляции r_s.

Простые количественные оценки показывают, что размеры доменов имеют макроскопический масштаб $r_s \sim 10^{-1}$ см. Этот эффект должен легко наблюдаться экспериментально — методом электронного магнитного резонанса, магнитооптическими методами, например на основе эффекта Керра и т. д.

При большой константе скорости аннигиляции спины различной ориентации локально не сосуществуют, поэтому в режиме медленной спин-решеточной релаксации средняя концентрация адсорбированных атомов может быть оценена как значение корреляционных функций (4), (5), (7) на радиусе рекомбинации. В стационарном режиме это приводит к следующим результатам:

$$c^2 \sim I_0/k_d,\ d=3, \tag{9а}$$
$$c^2 \sim I_0 (2\pi D)^{-1} [\ln (2r_s/r_a) - \gamma],\ d=2, \tag{9б}$$
$$c^2 \sim I_0 (8k_sD)^{-1/2},\ d=1. \tag{9в}$$

С уменьшением коэффициента диффузии концентрация частиц растет, однако, согласно вышесказанному, должно быть $D \gg k_s r_a^2$. Значения концентрации адсорбированных атомов (9) значительно превосходят те, которые соответствовали бы однородно размешанным спинам различной ориентации.

В заключение рассмотрим процесс релаксации спинов после выключения источника, действовавшего в течение времени T. Результат для одноточечной корреляционной функции плотностей нескомпенсированных спинов имеет вид

$$\langle z^2(\mathrm{x}, t)\rangle = f_d(t) - f_d(t+T), \tag{10}$$

где

$$f_3(t) = \frac{I_0}{2(2\pi D)^{3/2} t^{1/2}}[\exp(-4k_st) - 2\sqrt{\pi k_s t}\,\mathrm{erfc}(2\sqrt{k_s t})],$$

$$f_2(t) = I_0 (4\pi D)^{-1} E_1 (4k_s t), \quad f_1(t) = \frac{I_0}{8\sqrt{2k_s D}} \operatorname{erfc}\left(2\sqrt{k_s t}\right),$$

E_1 — интегральная экспонента.

При больших временах действия источника ($k_s t$, $k_s T \gg 1$) получаем следующую долговременную асимптотику:

$$c^2 \sim \langle z^2(\mathbf{x}, t)\rangle = \beta_d \frac{I_0 \exp(-4k_s t)}{k_s (Dt)^{d/2}} \left\{1 - \frac{d}{8k_s t} - \exp(-4k_s T) + \ldots\right\}, \qquad (11)$$

где

$$\beta_3 = \left[16 (2\pi)^{3/2}\right]^{-1}, \ \beta_2 = (16\pi)^{-1}, \ \beta_1 = \left(16\sqrt{2\pi}\right)^{-1},$$

причем при $\ln k_s t \ll k_s T$ в фигурных скобках главными являются первые два слагаемые, а на конечном этапе при выполнении противоположного неравенства — первое и третье. Таким образом, если время действия источника велико, его конечность на процессе релаксации практически не сказывается, что, очевидно, связано с ограниченностью радиуса корреляций вследствие экранирования. Намагниченность в доменах падает со временем экспоненциально с характерным временны́м масштабом k_s^{-1} в результате мономолекулярной спин-решеточной релаксации.

Итак, для экспериментального изучения предлагается система, в которой на поверхности подложки стохастически под действием источника возникает доменная структура адсорбированных спинов. Характерные размеры доменов имеют макроскопические значения и должны легко поддаваться наблюдению. Описаны как стационарный режим, так и выход на него при включении источника и релаксация после выключения генерации. Физическими допущениями, использованными в рассмотрении, являются релаксационный характер переходов между спиновыми состояниями и быстрый процесс спиновой конверсии за счет СТВ; в остальном полученные результаты для корреляционных функций являются точными.

Литература

[1] Овчинников А. А., Бурлацкий С. Ф. // Письма ЖЭТФ. 1986. Т. 43. № 10. С. 494—496.
[2] Бурлацкий С. Ф., Овчинников А. А., Пронин К. А. // ЖЭТФ. 1987. Т. 92. № 2. С. 625—637.
[3] Гутин А. М., Михайлов А. С., Яшин В. В. // ЖЭТФ. 1987. Т. 92. № 3. С. 941—954.
[4] Anacker L. W., Kopelman R. // Phys. Rev. Lett. 1987. V. 58. N 4. P. 289—290.
[5] Zhang Yi-Cheng. // Phys. Rev. Lett. 1987. V. 59. N 15. P. 1726—1728.
[6] Калнинь Ю. Х. // Изв. АН ЛатвССР, сер. физ. и техн. наук, 1982. № 5. С. 3—33.
[7] Антонов-Романовский В. В. // ФТТ. 1983. Т. 25. № 2. С. 599—601.
[8] Винецкий В. Л. // ФТТ. 1983. Т. 25. № 4. С. 1159—1165.
[9] Котомин Е. А., Кузовков В. Н., Тале И. А. // Изв. АН ЛатвССР, сер. физ. и техн. наук. 1984. № 4. С. 114—117.

Институт химической физики
АН СССР
Москва

Поступило в Редакцию
4 августа 1988 г.