Физика низких температур, 2000, т. 26, № 5, с. 471–474

О ядерной низкотемпературной спин-решеточной релаксации в аморфных материалах

Л. Ж. Захаров, Р. Л. Лепсверидзе

Институт физики АН Грузии, Грузия, 380077, г. Тбилиси, ул. Тамарашвили, 6
E-mail: nic@physics.iberiapac.ge

Статья поступила в редакцию 19 января 1999 г., после переработки 29 ноября 1999 г.

Изучен механизм ядерной магнитной релаксации, обусловленной косвенным взаимодействием ядерных спинов с двухуровневыми системами (ДУС), источниками которого являются сверхтонкое взаимодействие ядерных спинов с электронным спином и взаимодействие электронных спинов с ДУС. Показано, что в определенных условиях механизм, предложенный в данной работе, является эффективным.

Вивчено механізм ядерної магнітної релаксації, обумовленої непрямою взаємодією ядерних спінів з дворівневими системами (ДРС), джерелами котрого є надтонка взаємодія ядерних спінів з електронним спіном та взаємодія електронних спінів з ДРС. Показано, що у визначених умовах механізм, запропонований у даній роботі, є ефективним.

PACS: 76.60.Es

Хорошо известно, что физические свойства неупорядоченных систем при низких температурах ($T < 1$ K) определяются туннельными двухуровневыми системами (ДУС) [1]. Туннельная двухуровневая система представляет собой атом или группу атомов, имеющих два близколежащих состояния равновесия, переходы между которыми осуществляются туннелированием. Влиянию туннельных ДУС на ядерную спин-решеточную релаксацию посвящено большое количество работ [2–6]. В частности, в работах [2–4] исследована ядерная спин-решеточная релаксация различных ядер с квадрупольным моментом в широкой области температур, изучена релаксация, обусловленная связью квадрупольного момента с решеткой, и рассмотрен процесс рамановского типа в случае двух ДУС и ДУС и фононов.

Работа [5] посвящена низкотемпературной ядерной спин-решеточной релаксации в неупорядоченных системах с парамагнитными примесями. Рассмотрен механизм релаксации, обусловленный модуляцией диполь-дипольного взаимодействия между ядерными спинами матрицы и электронными спинами примесей, возникающей из-за туннелирования ядра из одного положения равновесия в другое (предполагалось, что часть атомов, имеющих ядерный спин, образуют ДУС). Эффективность данного механизма уменьшается с уменьшением концентрации парамагнитных примесей.

В работе [6] исследована низкотемпературная ядерная спин-решеточная релаксация, обусловленная эффективным взаимодействием между ядерным спином и ДУС, возникающим вследствие диполь-дипольного взаимодействия между ядром и парамагнитным центром, и взаимодействием электронных спинов с ДУС, обусловленным модуляцией g-фактора.

В настоящей работе изучена релаксация ядерных спинов атомов, имеющих электронный спин. Кроме того, в предположении, что эти атомы образуют ДУС, рассмотрен механизм релаксации, связанный с косвенным взаимодействием между ядерными спинами и ДУС, источниками которого являются сверхтонкое взаимодействие ядерных спинов с электронным спином и взаимодействием электронных спинов с ДУС, возникающее за счет модуляции g-фактора (вследствие туннелирования ДУС происходит модуляция внутрикристаллического поля).

Кроме отмеченного существует аналогичный механизм, рассмотренный в [5], который возникает вследствие модуляции диполь-дипольного взаимодействия ядерного спина одного атома с электронным спином другого (модуляция возникает в результате туннелирования атома из одного положения равновесия в другое). В настоящей статье проводится сравнение скоростей релаксации, обусловленных этими механизмами.

1. Рассмотрим помещенный в ориентированное вдоль оси Z постоянное магнитное поле H_0 аморфный диамагнитный образец, содержащий парамагнитные примеси, часть которых представляют собой ДУС. Электронные спины парамагнитных примесей будем считать равными $1/2$. В этом случае, как известно [7], основной вклад в электронное спин-фононное взаимодействие, а следовательно, и во взаимодействие электронных спинов с ДУС, вносит зеемановская часть эффективного спин-гамильтониана:

$$\mathcal{H}_{ZS} = H_0 \sum_i \sum_\alpha g^{\alpha z}(\mathbf{r}_i) S_i^\alpha , \qquad (1)$$

где $g^{\alpha z}$ — симметричный g-тензор второго ранга, а суммирование идет по примесям, представляющим собой ДУС.

Запишем гамильтониан (1) в представлении, обычно используемом для описания ДУС, в котором в качестве базисных выбираются волновые функции основных состояний изолированных потенциальных ям, составляющих асимметричные ямы [1]. Представим радиус-вектор i-ой ДУС в виде $\mathbf{r}_i = \mathbf{r}_{i0} + \eta_i\, \mathbf{n}_i$ ($\mathbf{r}_{i0}$ — радиус-вектор точки, лежащей посередине расстояния между минимумами i-ой асимметричной потенциальной ямы; $\mathbf{n}_i$ — единичный вектор, ориентированный вдоль оси, проходящей через эти минимумы; η_i — координата, отсчитываемая в направлении $\mathbf{n}_i$). Разложим выражение (1) по параметру η_i/a (a — межатомное расстояние), который предполагаем малым, так как расстояние между потенциальными ямами, где происходит туннелирование, намного меньше межатомных расстояний, ограничиваясь линейными по этому параметру приближением. Совершая над полученным таким образом выражением унитарное преобразование, диагонализирующее гамильтониан ДУС, и вводя (следуя модели спиновой аналогии [1]) псевдоспин $\mathbf{d}_i$ со свойствами спина $1/2$ для искомой части гамильтониана взаимодействия электронных спинов парамагнитных примесей с ДУС, получаем

$$\mathcal{H}_{DS} = \sum_i (D_i^- S_i^+ + D_i^+ S_i^-) + \sum_i D_i^z S_i^z , \qquad (2)$$

где

$$D_i^z = H_0 G_i^{zz} \frac{l}{a} (d_i^z \cos\theta_i - d_i^x \sin\theta_i) ,$$

$$D_i^\pm = H_0 G_i^{\pm z} \frac{l}{a} (d_i^z \cos\theta_i - d_i^x \sin\theta_i) ,$$

$$G_i^{\pm z} = \sum_\gamma n_\gamma \left(a\, \frac{\partial g^{\pm z}(\mathbf{r}_i)}{\partial x_i^\gamma} \right)_{\mathbf{r}_{i0}} ,$$

$$\sin\theta_i = \frac{\Delta_{0i}}{E_i} , \quad \cos\theta_i = \frac{\sqrt{E_i^2 - \Delta_{0i}^2}}{E_i} ,$$

$$G_i^{zz} = \sum_\gamma n_\gamma \left(a\, \frac{\partial g^{zz}(\mathbf{r}_i)}{\partial x_i^\gamma} \right)_{\mathbf{r}_{i0}} ,$$

$E_i = \sqrt{\Delta_i^2 + \Delta_{0i}^2}$ — энергия ДУС, Δ_i — параметр асимметрии, Δ_{0i} — энергия туннелирования, l — среднее расстояние между минимумами асимметричной потенциальной ямы.

Гамильтониан косвенного взаимодействия между ядерными спинами и ДУС может быть получен в результате усреднения гамильтониана по быстрым движениям электронных спинов примесей

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_{SF} + \mathcal{H}_{DS} , \qquad (3)$$

где $\mathcal{H}_{SF}$ — гамильтониан сверхтонкого взаимодействия:

$$\mathcal{H}_{SF} = \sum_i A I_i^z S_i^z + \sum_i \frac{A}{2} (S_i^+ I_i^- + S_i^- I_i^+) .$$

Следуя работе [8], для эффективного взаимодействия получаем выражение

$$\mathcal{H}_{\text{eff}} = \sum_i \frac{A}{\hbar\omega_s} S_i^z (G_i^{-z} I_i^+ + G_i^{+z} I_i^-) \times$$

$$\times H_0 \frac{l}{a} [d_i^z \cos\theta_i - \frac{1}{2} \sin\theta_i (d_i^+ + d_i^-)] -$$

$$- \sum_i \frac{A}{\hbar\omega_s} D_i^z (I_i^+ S_i^- + I_i^- S_i^+) .$$

Мы не рассматриваем часть эффективного гамильтониана, пропорциональную $I^+S^-d^+$, $I^-S^+d^-$, ..., так как плотность состояний ДУС на зеемановских частотах электронов будет меньше, чем плотность фононов на той же частоте.

При выводе этого выражения было учтено, что w_I , $A << w_s$ (w_I , w_s — зеемановская частота ядерных спинов и электронов соответственно, A — константа сверхтонкого взаимодействия).

Для вычисления скорости ядерной спин-решеточной релаксации, обусловленной взаимодействием $\mathcal{H}_{\text{eff}}$, исходим из гамильтониана

$$\mathcal{H} = \hbar w_s \sum_i S_i^z - \hbar w_I \sum_i I_i^z + \mathcal{H}_{\text{eff}} + $$

$$+ \sum_i A I_i^z S_i^z + \sum_i E_i\, d_i^z \, .$$

Используя метод неравновесного статистического оператора [9] в высокотемпературном приближении по ядерным спинам $\hbar w_I << kT$, для обратной температуры ядерных спинов получаем уравнение

$$\frac{\partial \beta_I}{\partial t} = - \frac{\beta_I - \beta}{T_1} \, , \qquad (4)$$

где

$$\frac{1}{T_1} = \frac{2}{N_I (\hbar w_I)^2} \int\limits_{-\infty}^{\infty} \langle K_I(t) K_I \rangle \, dt \, ,$$

$$K_I = i w_I \, [I_i^z \, , \mathcal{H}_{\text{eff}}] \, ,$$

$$K_I(t) = \exp\left(\frac{i \mathcal{H}_0 t}{\hbar} \right) K_I \exp\left(- \frac{i \mathcal{H}_0 t}{\hbar} \right),$$

$$\mathcal{H}_0 = \mathcal{H} - \mathcal{H}_{\text{eff}} \, , \qquad \langle Q \rangle = \frac{\operatorname{Sp} Q}{\operatorname{Sp} 1} \, .$$

После вычислений выражение для скорости релаксации имеет вид

$$\frac{1}{T_1} = \frac{\pi H_0^2}{4 N_I \hbar^2} \left(\frac{l}{a} \right)^2 \left(\frac{A}{\hbar w_s} \right)^2 \sum_i |G_i^{+z}|^2 \cos^2 \theta_i \times$$

$$\times \left(1 - \operatorname{th}^2 \frac{E_i}{2 k_B T} \right) f(w_I) + $$

$$+ \frac{\pi H_0^2}{8 N_I \hbar^2} \sum_i \left(\frac{A}{\hbar w_s} \right)^2 \sin^2 \theta_i \delta \left(\frac{E_i}{\hbar} - w_I \right) \left(\frac{l}{a} \right)^2 |G_i^{+z}|^2 \, , \qquad (5)$$

где

$$f(w_I) = \frac{1}{2\pi} \int\limits_{-\infty}^{\infty} \frac{\langle \delta d_i^z \delta d_i^z(t) \rangle}{\langle \delta d_i^z \delta d_i^z \rangle} \exp\,(i w_I t) dt \, ,$$

$\delta d_i^z = d_i^z - \langle d_i^z \rangle$ — флуктуация d_i^z-компоненты псевдоспина.

Переходя от суммирования к интегрированию по параметрам ДУС с помощью преобразования [1]

$$\sum_i (\ldots) \Rightarrow \int\limits_0^{E_{\max}} dE \int\limits_{\rho_0}^{1} d\rho F(E, \rho)(\ldots) \, ,$$

где

$$F(E, \rho) = \frac{N_D}{\varepsilon E_{\max}} \rho^{-1} (1 - \rho)^{-1/2} \, ,$$

$$\rho = \left(\frac{\Delta_0}{E} \right)^2 , \quad \varepsilon = \ln\,(4/\rho_0) \, ,$$

ρ_0 — минимальное значение параметра ρ ($\rho_0 <<$ $<< 1$), N_D — концентрация ДУС, $E_{\max}$ — максимальная энергия ДУС, и, учитывая, что $\hbar w_s =$ $= g_0^{zz} H_0$ ($g_0^{zz} = g^{zz}(\mathbf{r}_{i0})$), имеем

$$\frac{1}{T_1} = \frac{\pi}{2} \frac{N_D}{N_I} A^2 \left(\frac{l}{a} \right)^2 \frac{1}{\hbar^2 E_{\max}} \left(f(w_I)\, k_B T + \frac{\hbar}{2\varepsilon} \right) \times$$

$$\times \frac{1}{3} \sum_\gamma \left| \frac{a}{g_0^{zz}} \frac{\partial g^{+z}}{\partial x_0^\gamma} \right|^2 . \qquad (6)$$

Полагая

$$\frac{1}{3} \sum_\gamma \left| \frac{a}{g_0^{zz}} \frac{\partial g^{+z}}{\partial x_0^\gamma} \right|^2 \sim \left| \frac{g_0^{z+}}{g_0^{zz}} \right| \left(\frac{a}{\Lambda} \right)^2 ,$$

Λ — характерный масштаб изменения внутрикристаллического поля, получаем

$$\frac{1}{T_1} = \frac{\pi}{2} \frac{N_D}{N_I} A^2 \left(\frac{l}{a} \right)^2 \frac{1}{\hbar^2 E_{\max}} \times$$

$$\times \left(f(w_I)\, k_B T + \frac{\hbar}{2\varepsilon} \right) \left| \frac{g_0^{z+}}{g_0^{zz}} \right| \left(\frac{a}{\Lambda} \right)^2 . \qquad (7)$$

Сравним полученную скорость релаксации со скоростью, обусловленной механизмом, рассмотренным в работе [5]. Мы полагаем, что атом имеет как ядерный, так и электронный спин, причем $N_e = N_I$ (N_e и N_I — концентрации электронных и ядерных спинов соответственно). Найденная в [5] скорость релаксации имеет вид

$$\frac{1}{T_1{}'} \approx \frac{\pi}{2}\frac{N_D}{N_I}\frac{1}{4\hbar^2 E_{\max}}\left(f(\omega_I)k_B T + \frac{\hbar}{2\varepsilon}\right)\times$$

$$\times 9\mathcal{Z}\left(\frac{\gamma_I\gamma_e\hbar^2}{r_0^3}\right)^2\left(\frac{l}{r_0}\right)^2, \qquad (8)$$

где γ_I и γ_e — гиромагнитные отношения ядер и электронов соответственно, r_0 — среднее расстояние между ядерным спином одного атома и электронным спином другого, $\mathcal{Z}$ — число ближайших ядерных спинов к рассмотренному спину.

Сравним (7) и (8):

$$\mathcal{K} = \frac{1}{T_1} : \frac{1}{T_1{}'} \sim \frac{4}{9}\left|\frac{g_0^{z+}}{g_0^{zz}}\right|^2\left(\frac{l}{a}\right)^2\left(\frac{a}{\Lambda}\right)^2\frac{A^2}{\mathcal{Z}(\gamma_I\gamma_e\hbar^2/r_0^3)^2}\times$$

$$\times\left(\frac{r_0}{l}\right)^2 \sim \frac{4}{9\mathcal{Z}}\left|\frac{g_0^{z+}}{g_0^{zz}}\right|^2\left(\frac{r_0}{\Lambda}\right)^2\frac{A^2}{(\gamma_I\gamma_e\hbar^2/r_0^3)^2}. \qquad (9)$$

Оценивая эту величину для параметров $\mathcal{Z} \sim 10$, $|g_0^{z+}/g_0^{zz}|^2 \sim 10^{-3}$, $\Lambda^2 \sim 10^{-16}$ см^2, $\gamma_I \sim 10^4$ Гс$^{-1}$·с$^{-1}$, $\gamma_e \sim 10^7$ Гс$^{-1}$·с$^{-1}$, $A \sim 10^{-19}$ эрг [10], получаем, что в случае, когда среднее расстояние между ядерным спином одного атома и электронным спином другого больше $3\cdot10^{-8}$ см ($r_0 > 3\cdot10^{-8}$ см), тогда $\mathcal{K} > 1$. Из сказанного следует, что рассмотренный механизм в определенных случаях является эффективным.

Скорость релаксации, полученная в работе [6], имеет вид

$$\frac{1}{T_{ID}} = \frac{\pi}{2}\frac{N_0}{N_I}\frac{\langle S_0^z\rangle^2}{\hbar^2 E_{\max}}\left(\frac{l}{a}\right)^2\left(f(\omega_I)k_B T + \frac{\hbar}{2\varepsilon}\right)\times$$

$$\times\frac{1}{3}\left(\sum_\gamma\left|\frac{a}{g_0^{zz}}\frac{\partial g^{+z}}{\partial x_0^\gamma}\right|^2\right)\sum_j\left(|V_{j0}^{+-}|^2 + |V_{j0}^{++}|^2\right), \qquad (10)$$

где V_{j0}^{+-}, V_{j0}^{++} — диполь-дипольное взаимодействие ядерных спинов одного атома с электронным спином другого, $\langle S_0^z\rangle^2 = 1/4$ ($\langle S_0^z\rangle$ — среднее квантовостатистическое значение S^z).

Сравним (7) и (10):

$$\mathcal{K} = \frac{1}{T_1} : \frac{1}{T_{ID}} = 4A^2\left[\sum_j\left(|V_{j0}^{+-}|^2 + |V_{j0}^{++}|^2\right)\right]^{-1} \sim$$

$$\sim \frac{A^2}{(\gamma_I\gamma_e\hbar^2/r_0^3)^2}.$$

Поскольку сверхтонкое взаимодействие больше диполь-дипольного взаимодействия между ядерным спином одного атома и электронным спином другого, полученное выражение больше единицы и, следовательно, рассмотренный механизм является эффективным.

Проведение исследований, описанных в настоящей публикации, стало возможным благодаря гранту № 2.12 Академии наук Грузии.

1. P. Anderson, B. Halperin, and G. Varma, *Philos. Mag.* **25**, 1 (1972); W. Phillips, *J. Low Temp. Phys.* **7**, 351 (1972); Дж. Блек, *Металлические стекла*, Мир, Москва (1983).
2. T. L. Reinecke and K. L. Ngai, *Phys. Rev.* **B12**, 3476 (1975).
3. G. Balzer-Jollembeck, O. Kanert, and J. Steinert, *Solid State Commun.* **65**, 303 (1988).
4. J. Szeftel and H. Alloul, *Phys. Rev. Lett.* **34**, 657 (1975).
5. L. L. Buishvili, L. Zh. Zakharov, A. I. Tugushi, and N. P. Fokina, *Physica* **B168**, 205 (1991).
6. L. L. Buishvili, N. P. Giorgadze, and L. Zh. Zakharov, *Phys. Status Solidi* **B209**, 427 (1998).
7. С. А. Альтшулер, Б. М. Козырев, *Электронный парамагнитный резонанс соединений элементов промежуточных групп*, Наука, Москва (1972).
8. Л. Л. Буишвили, Е. Б. Волжан, М. Г. Менабде, *ТФМ* **46**, 251 (1981).
9. Д. Н. Зубарев, *Неравновесная статистическая термодинамика*, Наука, Москва (1971).
10. Дж. Вертц, Дж. Болтон, *Теория и практические приложения метода ЭПР*, Мир, Москва (1975).

On low temperature nuclear spin-lattice relaxation in amorphous materials

L. Zh. Zakharov and R. L. Lepsveridze

The mechanism of nuclear magnetic relaxation is investigated which is caused by indirect interaction between the nuclear spin system and the two-level systems. The source of this indirect interaction is the hyperfine interaction between the nuclear and electrical spin systems and the interaction between the electrical spins and two-level systems. It is shown that under certain conditions this kind of relaxation can be more effective than those known before.