Физика низких температур, 1998, т. 24, № 3, с. 262–265

Влияние бозонного пика на низкотемпературную электронную спин-решеточную релаксацию в аморфных материалах

Н. П. Гиоргадзе, Л. Ж. Захаров

Институт физики АН Грузии, Грузия, 380077, г. Тбилиси, ул. Тамарашвили, 6

Статья поступила в редакцию 30 сентября 1997 г.

Исследовано влияние бозонного пика (БП) на низкотемпературную электронную спин-решеточную релаксацию в аморфных материалах. Показано, что для частот ЭПР, расположенных внутри ширины бозонного пика, вклад последнего в однофононную релаксацию доминирует над дебаевским и качественно изменяется полевая зависимость скорости релаксации, тогда как температурная зависимость остается неизменной.

Досліджено вплив бозонного піка (БП) на низькотемпературну електронну спін-граткову релаксацію в аморфних матеріалах. Показано, що для частот ЭПР, розміщених усередині ширини бозонного піка, внесок останнього в однофононну релаксацію домінує над дебаєвським і якісно змінюється польова залежність швидкості релаксації, тимчасом як температурна залежність лишається незмінною.

PACS: **76.30.–v**

Известно [1], что в аморфных материалах (стеклах) плотность колебательных состояний характеризуется наличием низкочастотного пика, представляющего собой колебательные возбуждения, подчиняющиеся статистике Бозе. Частота ω_m , соответствующая максимальной плотности состояний в пике, находится (для разных материалов) в интервале частот (4–20)$\cdot 10^{11}$ c^{-1}, а максимальная плотность состояний в пике превышает дебаевскую плотность состояний на той же частоте ω_m примерно в 2–10 раз. Существование бозонного пика (БП) подтверждается экспериментами по комбинационному рассеянию света и рассеянию нейтронов. Наличие БП в плотности колебательных состояний существенно влияет на физические свойства аморфных материалов (теплоемкость, теплопроводность) в области температур (3–15) К.

Естественно, БП должен оказывать существенное влияние и на электронную спин-решеточную релаксацию (ЭСРР), для которой фононные механизмы остаются, по-видимому, главными (в том числе и в аморфных материалах). Впервые (насколько нам известно) на это обстоятельство было обращено внимание в работе [2], в которой был рассмотрен двухквантовый (рамановского типа) процесс электронной спин-решеточной релаксации в условиях, при которых активную роль в процессе релаксации играют колебательные возбуждения, относящиеся к БП. Было получено выражение для скорости релаксации, на сновании анализа которого авторы оценили температурную зависимость этой скорости как пропорциональную T_L^5 (T_L — температура решетки). Заметим, что полученное в работе [2] выражение предполагает малость частоты ЭПР по сравнению с ω_m . Примечательно, однако, что частотный интервал, охватываемый пиком, частично перекрывается с интервалом частот ЭПР (10^{10}–10^{11}) c^{-1}. Поэтому для достаточно высоких частот ЭПР, в особенности для частот ЭПР ~ ω_m , может ожидаться существенный спад связаного с БП двухквантового механизма релаксации, поскольку в этом случае число пар колебательных возбуждений, участвующих в акте энергообмена между электронной спин-системой и решеткой и относящихся к БП, будет крайне ограничено.

Одновременно следует ожидать существенного увеличения скорости одноквантового механизма спин-решеточной релаксации, в которой в данном случае будут участвовать обладающие избыточной плотностью состояний колебательные возбуждения. В настоящей заметке этот вопрос будет исследован количественно.

Ограничимся рассмотрением случая, когда спин $S = 1/2$, и положим, что время установления внутреннего равновесия в спин-системе намного меньше характерных временных масштабов спин-решеточной релаксации. Далее примем, что параметр $\hbar\omega_s/k_BT_L$ произвольный, а параметр $\hbar\omega_d/k_BT_L << 1$ (ω_s — частота ЭПР; ω_d — частота электронного спина в локальном поле, обусловленном диполь-дипольным взаимодействием электронных спинов). Наконец, будем считать, что спин-система выведена из состояния теплового равновесия с термостатом резонансным взаимодействием. И в этих условиях релаксацию электронной поляризации можно рассматривать независимо от релаксации энергии спин-спинового взаимодействия (сохраняя за секулярной частью последнего роль источника хаотизации в спиновой системе) и исходить из приведенного в работе [3] гамильтониана связанной спин-фононной системы

$$H = H_S + H_L + H_{SL} , \qquad (1)$$

где

$$H_s = \hbar\omega_s \sum_j S_j^z , \qquad (2)$$

— зеемановская энергия электронной спин-системы;

$$H_L = \hbar \sum_{\mathbf{q}} \omega_{\mathbf{q}} a_{\mathbf{q}}^+ a_{\mathbf{q}} \qquad (3)$$

— гамильтониан фононов (решетки);

$$H_{SL} = \frac{i\hbar}{2} \sum_{\mathbf{q}} \sum_j \frac{1}{N^{1/2}} \left(g_{\mathbf{q}}^+ S_j^- + g_{\mathbf{q}}^- S_j^+ \right) (\exp i\mathbf{q}\mathbf{r}_j\ (a_{\mathbf{q}} - a_{-\mathbf{q}}^+)) \qquad (4)$$

— гамильтониан спин-фононной связи; $\mathbf{q}$ и $\omega_{\mathbf{q}} = qc$ — соответственно волновой вектор и частота фонона; c — скорость звука; $a_{\mathbf{q}}^+$ и $a_{\mathbf{q}}^-$ — соответственно операторы рождения и уничтожения фонона с волновым вектором $\mathbf{q}$; N — число атомов в образце; $\mathbf{r}$ — радиус-вектор j-го спина; $g_{\mathbf{q}}^\alpha$ — константа спин-фононной связи. При этом

$$g_{\mathbf{q}}^+ = \omega_s \left(\frac{\omega_{\mathbf{q}}}{4\Omega_1} \right)^{1/2}$$

для крамерсовых магнитных ионов и

$$g_{\mathbf{q}}^+ = \left(\frac{\omega_{\mathbf{q}}\Omega_2}{4} \right)^{1/2}$$

для некрамерсовых магнитных ионов (Ω_1 и Ω_2 — константы с размерностью частоты) и справедливо соотношение $(g_{\mathbf{q}}^-)^* = g_{-\mathbf{q}}^+$.

Электронная спин-решеточная релаксация может теперь быть рассмотрена как процесс установления полного теплового равновесия на кинетическом этапе эволюции в квазиравновесной системе, состоящей из зеемановского резервуара электронных спинов и решетки (термостата). Используя для описания этого процесса метод неравновесного статистического оператора [4], после простых вычислений получаем хорошо известное уравнение для скорости изменения релаксирующей электронной поляризации $P_S = -\mathrm{th}\,(\hbar\omega_s/2k_BT_s)$ (T_s — зеемановская спин-температура):

$$\frac{dP_S}{dt} = -\frac{(P_S - P_{SL})}{T_{SL}} , \qquad (5)$$

где скорость релаксации дается выражением

$$\frac{1}{T_{SL}} = \frac{4\pi}{|P_{SL}|N} \sum_{\mathbf{q}} |g_{\mathbf{q}}^-|^2 \delta(\omega_s - \omega_{\mathbf{q}}) , \qquad (6)$$

P_{SL} — электронная поляризация при температуре решетки.

Переход к континуальному описанию по фононам осуществляется обычной заменой суммирования интегрированием:

$$\sum_{\mathbf{q}} (\ldots) \to \int \frac{d\Omega_{\mathbf{q}}}{4\pi} \int d\omega\, G(\omega)\, (\ldots) ,$$

где (в отличие от случая обычных материалов) плотность состояний дается выражением [1]

$$G(\omega) = \frac{9N\omega^2}{\omega_D^3} \left\{ 1 + \mu \frac{\omega_m^2}{\omega^2} \exp\left[-\left(\frac{\ln \omega/\omega_m}{\sqrt{2}\sigma} \right)^2 \right] \right\} , \qquad (7)$$

$\omega_D = (6\pi^2 c^3/a^3)^{1/3}$ — частота Дебая; a — параметр решетки; μ — коэффициент, принимающий для разных материалов значения от 2 до 10 и характеризующий ширину БП; параметр $\sigma \simeq 0{,}48$. Первое слагаемое в этом

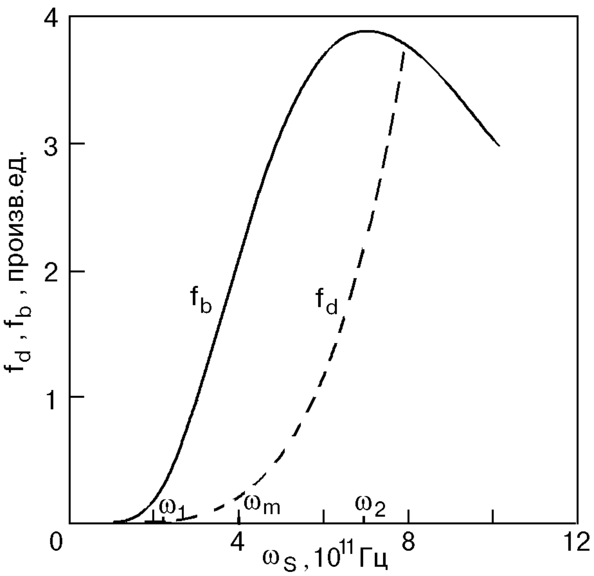

Рис. 1. Зависимость скоростей релаксации $f_b = 1/(T_{SL}^{BP})\{2\cdot10^{-20}\Omega_1)/9\pi$ (сплошная кривая) и $f_d = 1/(T_{SL}^{D})(2\cdot10^{-20}\Omega_1)/9\pi$ (пунктирная кривая) от частоты ЭПР (постоянного магнитного поля); $\omega_1 = \omega_m \exp(-\sigma\sqrt{2\ln 2}) \simeq 2{,}3\cdot10^{11}$ Гц и $\omega_2 = \omega_m \exp(\sigma\sqrt{2\ln 2}) \simeq 7\cdot10^{11}$ Гц — частоты, соответствующие полуширинам БП на полувысоте. Разность $\gamma = \omega_2 - \omega_1 = 4{,}7\cdot10^{11}$ Гц — ширина бозонного пика.

выражении представляет собой обычную дебаевскую плотность состояний, а второе — вклад в плотность состояний колебательных возбуждений, локализованных в окрестности частоты ω_m , ширина соответствующей области

$$\gamma = 2\omega_m \,\mathrm{sh}\, \sigma\sqrt{2\ln 2} \simeq 1{,}2\omega_m .$$

Используя вышеупомянутое преобразование и выражение (6) для искомой скорости электронной спин-решеточной релаксации, будем иметь

$$\frac{1}{T_{SL}} = \frac{1}{T_{SL}^{D}} + \frac{1}{T_{SL}^{BP}} , \tag{8}$$

где

$$\frac{1}{T_{SL}^{D}} = \frac{18\pi\omega_s^2}{\omega_D^3|P_{SL}|}\, g^2(\omega_s) \tag{9}$$

— дебаевская скорость релаксации;

$$\frac{1}{T_{SL}^{BP}} = \frac{18\pi\mu\omega_m^2}{\omega_D^3|P_{SL}|}\, g^2(\omega_s) \exp\left[-\frac{\ln(\omega_s/\omega_m)}{\sqrt{2}\sigma}\right]^2 \tag{10}$$

— вклад в скорость релаксации, вносимый БП;

$$g^2(\omega_S) = \int \frac{d\Omega_{\mathbf{q}}}{4\pi}\, |g_{\mathbf{q}}^{+}|^2 .$$

Обсудим полученные результаты.

Прежде всего заметим, что (как это следует из выражений (9) и (10)) при достаточно больших значениях μ и для частот ЭПР, расположенных внутри БП, вклад БП в однофононную релаксацию доминирует над дебаевским и, следовательно, характер однофононной релаксации определяется именно им. Наличие БП не влияет, естественно, на температурную зависимость скорости релаксации, которая (как и в дебаевском случае) имеет вид $1/T_{SL} \propto \mathrm{cth}\,(\hbar\omega_s/k_BT_L)$. Однако качественно изменяется полевая зависмость, что хорошо видно на рис. 1, на котором изображена полевая зависимость скоростей релаксации $1/T_{SL}^{D}$ и $1/T_{SL}^{BP}$ для крамерсовых магнитных ионов в образце с $\omega_D \sim 10^{13}$ Гц и $\omega_m \sim 4\cdot10^{11}$ Гц при температуре $T = 3$ К и $\mu = 10$.

Существенно также, что общее увеличение скорости релаксации должно повлечь за собой расширение области температур, в которой одноквантовый механизм ЭСРР будет доминировать над двухквантовым рамановским.

Заметим также, что наиболее подходящими для исследования влияния БП на однофононную электронную релаксацию являются стекла с не слишком высоким расположением пика ($T_m = (\hbar\omega_m/k_B) \sim$ 3–5 К) и по возможности большим коэффициентом μ. Действительно, в этом случае, по крайней мере при температурах $T_L \le T_m$, связанный с БП двухквантовый механизм релаксации, как и обычный рамановский, будет заведомо неэффективным и характерные особенности обусловленного БП одноквантового механизма релаксации проявятся наиболее четко.

В заключение авторы вырважают благодарность К. И. Сигуа за выполнение компьютерных расчетов, связанных с рис. 1.

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

1. В. К. Малиновский, В. И. Новиков, А. П. Соколов, *УФН* **163**, 119 (1993),
2. А. А. Лебанидзе, Т. Л. Буишвили, Г. Р. Какабадзе, *Биофизика* **42**, 811 (1997).
3. R. J. Elliot and J. B. Parkinson, *Proc. Phys. Soc.* **92**, 1024 (1967); Р. Х. Сабиров, *ФНТ* **16**, 1338 (1990).
4. Д. Н. Зубарев, *Неравновесная статистическая термодинамика*, Наука, Москва (1997).

The effect of boson peak on low-temperature electron spin-lattice relaxation in amorphous materials

N. P. Giorgadze and L. Zh. Zakharov

The effect of a boson peak (BP) on low-temperature electron spin-lattice relaxation in amorphous materials is investigated. It is found that for the EPR frequencies occured within the boson peak width the contribution of the boson peak to the single-phonon relaxation dominates over the Debye one. At the same time, the field dependence of the relaxation velocity changes qualitatively, while the temperature dependence remains unchainged.