

НИЗКОТЕМПЕРАТУРНАЯ ЯДЕРНАЯ РЕЛАКСАЦИЯ ПЕРВОГО РОДА ЧЕРЕЗ ПАРАМАГНИТНУЮ ПРИМЕСЬ

Л.Л.Буишвили, Т.Л.Буишвили, Н.П.Фокина

Показано, что в определенных условиях механизм ядерной релаксации первого рода, обусловленный модуляцией колебаниями решетки константы сверхтонкого взаимодействия, может играть решающую роль в релаксации ядер при сверхнизких температурах.

Как известно^{1,2} ядерная релаксация в твердых парамагнетиках определяется флюктуациями z -составляющей электронного спина S^z , входящего в сверхтонкое взаимодействие (СТВ) ядер с парамагнитными центрами вида $V_{mn}^{\pm z} I_m^z S_n^z$. Такая релаксация по терминологии¹ есть релаксация второго рода. Скорость релаксации T_I^{-1} , обусловленной флюктуациями S^z , пропорциональна множителю $(1 - p_0^2)$, где $p_0 = \text{th}(\hbar\omega_s/2k_B T_L)$ (ω_s – частота ЭПР, T_L – температура решетки), который при сверхнизких температурах ($p_0 \approx 1$) приводит к "замораживанию" ядерной релаксации. В то же время на эксперименте³ наблюдалась значительно большие скорости релаксации. Для объяснения результатов³ в⁴ был предложен и оценен механизм ядерной релаксации, который имеет место во втором порядке теории возмущений по СТВ вида $V_{mn}^{\pm z} I_m^z S_n^z$. Вычисленная нами скорость ядерной релаксации по механизму⁴ равна

$$T_I^{-1} = \frac{f}{4} \frac{1}{T_{sL}} \frac{[|V^{++}|^2 + (V^{+-})^2] \omega_I^2}{\hbar^2 \omega_s^4} \frac{p_0}{\hbar\omega_s/2k_B T_L}, \quad (1)$$

где

$$|V^{\gamma\delta}|^2 = N_I^{-1} \sum'_{mn} |V_{mn}^{\gamma\delta}|^2, \quad \gamma, \delta = +, -, z$$

суммирование по n происходит по всем узлам, доступным для парамагнитных центров, N_I – число ядерных спинов, f – разбавление электронных спинов, T_{sL} – время электронной спин-решеточной релаксации (прямой процесс), ω_I – ядерная зеемановская частота. Величина (1) слабо уменьшается с понижением температуры, но содержит малый множитель $(\omega_I/\omega_s)^2$. Однако, как известно¹, парамагнитная релаксация может быть вызвана флюктуациями констант взаимодействия между спинами (релаксация первого рода¹). Так как соответствующая скорость релаксации не должна содержать упомянутый малый множитель, то можно предположить, что модуляция колебаниями решетки константы СТВ вида $V_{mn}^{\pm z} I_m^z S_n^z$ обеспечит эффективную релаксацию ядер при сверхнизких температурах. Для вычисления соответствующей этому механизму T_I^{-1} в гамильтониане СТВ

$$\mathcal{H}_{\text{СТВ}} = \frac{1}{2} \sum_{mn} (V_{mn}^{+z} I_m^+ + V_{mn}^{-z} I_m^-) S_n^z$$

аналогично⁵ разложим константы $V_{mn}^{\pm z}$ в ряд по смещениям атомов из равновесных положений, ограничиваясь первым порядком. Тогда эффективное ядерное спин-фононное взаимодействие можно записать в виде

$$\mathcal{H}' = \sum_{mn\alpha\beta} G_{\alpha\beta}^{mn} e_{\alpha\beta} \quad (\alpha, \beta = x, y, z), \quad (2)$$

где

$$e_{\alpha\beta} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_\alpha}{\partial \beta} + \frac{\partial u_\beta}{\partial \alpha} \right) -$$

тензор деформации (u_α – компоненты вектора смещения),

$$G_{\alpha\beta}^{mn} = \frac{1}{4} \left(\frac{\partial V_{mn}^{+z}}{\partial R_\alpha} R_\beta + \frac{\partial V_{mn}^{-z}}{\partial R_\beta} R_\alpha \right) I_m^+ S_n^z + \text{к.с.}, \quad (3)$$

\mathbf{R} — вектор, соединяющий равновесные положения атомов. Проведем далее разложение $e_{\alpha\beta}$ по нормальным координатам решетки:

$$e_{\alpha\beta} = \frac{i}{2} \sum_{\mathbf{k}j} \sqrt{\frac{\hbar\omega_{\mathbf{k}j}}{2Mv^2}} \{ a_{\mathbf{k}j}^+ \exp(2\pi i \mathbf{k}\mathbf{R}) - a_{\mathbf{k}j}^- \exp(-2\pi i \mathbf{k}\mathbf{R}) \} (\lambda_\alpha f_\beta + \lambda_\beta f_\alpha), \quad (4)$$

где M — масса кристалла, $a_{\mathbf{k}j}^+$ — оператор рождения фонона j — той ветви с волновым вектором \mathbf{k} и частотой $\omega_{\mathbf{k}j}$, λ_α и f_α — направляющие косинусы вектора поляризации фотона и вектора \mathbf{k} соответственно, v — средняя скорость фононов. Вычисляя с помощью (2—4) скорость ядерной релаксации, будем применять высокотемпературное приближение для ядерных спинов, а также используем оценку

$$|\sum_{mn\alpha\beta} (\frac{\partial V^{+z}}{\partial R_\alpha} R_\beta + \frac{\partial V^{-z}}{\partial R_\beta} R_\alpha) (\lambda_\alpha \lambda_\beta + \lambda_\beta \lambda_\alpha)|^2 \sim f N_I |V^{+z}|^2.$$

Тогда

$$T_I^{-1} \sim 10^{-2} f \frac{\omega_I^2 |V^{+z}|^2 k_B T_L}{\hbar^2 \rho v^5}, \quad (5)$$

где ρ — плотность кристалла. Величина (5), как и (1), слабо зависит от температуры, однако в отличие от (1) она не содержит малый множитель $(\omega_I/\omega_s)^2$. Сравним величины (5) и (1). Их отношение c по порядку величины равно

$$c \sim 10^{-2} \frac{T_{sL} \hbar \omega_s^5}{\rho v^5 p_0}. \quad (6)$$

Подставляя в (6) данные для кремния, легированного фосфором ⁶ при $T_L = 1,25$ К: $\omega_s = 2\pi \cdot 0,84 \cdot 10^{10}$ рад/с, $T_{sL} \sim 3,8 \cdot 10^4$ сиоценивая $\rho \sim 10^3$ кг/м³, $v \sim 3 \cdot 10^3$ м/с, получаем $c \sim 10^2$ (имеется в виду релаксация ядер Si²⁹, которые не охватываются орбитой электрона в s-состоянии). В случае крамерсовских ионов, таких, как Cu²⁺ в Cu_xZn_{1-x}(NH₄)₂(SO₄)₂ · 6H₂O ⁷, скорость релаксации ядер за счет рассматриваемого в данной работе процесса может достигать такой же величины, как и за счет механизма, предложенного в ⁴, а также превалировать над ним.

Таким образом, модуляция сверхтонкой константы $V_{mn}^{\pm z}$ колебаниями решетки дает механизм ядерной релаксации, неэффективный при высоких температурах ($p_0 \ll 1$), но играющий важную роль при сверхнизких температурах ($p_0 \approx 1$).

Литература

1. Абрагам А. Ядерный магнетизм. М.: ИЛ, 1963.
2. Абрагам А., Гольдман М. Ядерный магнетизм: порядок и беспорядок. М.: Мир, т. 2, 1984.
3. Kuhns P.L. et al. Phys. Rev. B, 1987, 35, 4591.
4. Waugh J.S., Slichter Ch.P. Phys. Rev. B, 1988, 37, 4337.
5. Альтшuler С.А., Козырев Б.М. Электронный парамагнитный резонанс. М.: Наука, 1972.
6. Honig A., Stupp E. Phys. Rev., 1960, 117, 69. (Имеется перевод в сб. Электронный спиновый резонанс в полупроводниках. Ред. Н.А.Пенин. М.: ИЛ, 1962).
7. Wenckebach W.Th. et al. Phys. Rep., C, 1974, 14, 182.