Физика низких температур, 2002, т. 28, № 6, с. 580–583

Двухквантовая электронная спин-решеточная релаксация в аморфных телах

Л. Ж. Захаров, Л. Л. Чоторлишвили, Т. Л. Буишвили

Институт физики Академии наук Грузии, ул. Тамарашвили, 6, г. Тбилиси, 380077, Грузия
E-mail: Lchotor@yahoo.com

Статья поступила в редакцию 11 декабря 2001 г., после переработки 22 февраля 2002 г.

Изучен двухквантовый процесс электронной спин-решеточной релаксации в аморфных телах. Рассмотрен механизм релаксации с участием туннельных двухуровневых систем и фононов из области бозонного пика. Показано, что в определенных условиях этот механизм эффективен.

Вивчено двоквантовий процес електронної спін-гратової релаксації в аморфних тілах. Розглянуто механізм релаксації за участю тунельних дворівневих систем і фононів із області бозонного піка. Показано, що у визначених умовах цей механізм є ефективним.

PACS: **74.72.–h**

Изучение ядерной и электронной спин-решеточной релаксации в аморфных телах при низких температурах является одним из актуальных вопросов современной физики. Установлено, что низкотемпературные ($T < 1$ К) свойства аморфных тел определяются туннельными двухуровневыми системами (ДУС) [1], основной особенностью которых является то, что их плотность состояний — почти постоянная величина (слабо зависит от энергии), поэтому при низких температурах, когда возбуждены в основном низкочастотные акустические фононы, плотность которых мала, роль ДУС становится определяющей. Роль ДУС в процессе ядерной спин-решеточной релаксации изучена в работах [2], а в электронной — в [3].

Кроме того, установлено, что плотность колебательных состояний аморфных тел характеризуется наличием низкочастотного пика. Отмеченный пик, именуемый также бозонным пиком, в области температур порядка 10 К оказывает существенное влияние на физические свойства аморфных материалов [4].

С учетом сказанного для плотности колебательных состояний получено выражение [4]

$$g(\omega) = \frac{2N}{\omega_D^3}\left(\omega^2 + \mu\omega_m^2 \exp\left(-\frac{\ln^2 \omega/\omega_m}{2\sigma^2}\right)\right), \quad (1)$$

где ω_D — частота Дебая; μ — коэффициент, принимающий значения от 2 до 10 для разных материалов; $\sigma = 0{,}48$ — параметр, характеризующий ширину бозонного пика; N — число атомов; ω_m — частота, соответствующая максимальной плотности состояний в пике [4].

Бозонный пик оказывает существенное влияние и на электронную спин-решеточную релаксацию [5,6].

В работах [2] изучен процесс ядерной спин-решеточной релаксации в аморфных материалах при низких температурах: рассмотрены процессы рамановского типа с участием ДУС и фонона и двух ДУС. Отмечено что процесс с участием ДУС и фонона для скорости ядерной спин-решеточной релаксации дает выражение $1/T_1 \approx T^4$. Однако в этих работах использована модель Дебая и не учтены особенности плотности колебательных состоянии в аморфных системах.

В настоящей работе изучен процесс электронной спин-решеточной релаксации рамановского типа с участием ДУС и фонона из области бозонного пика.

Как известно, когда спин парамагнитных примесей равен $1/2$, спин-фононное взаимодействие определяется модуляцией g-тензора парамагнитной примеси, связанной с модуляцией внутрикристаллического поля колебаниями решетки [7]. С другой стороны, в стеклах взаимодействие электронных спинов с ДУС может иметь место и за счет модуляции g-тензора вследствие туннелирования парамагнитного центра (ПЦ) из одного положения равновесия в другое (предполагаем, что часть ПЦ образует ДУС). Часть зеемановской энергии, ответственной за процесс релаксации электронного спина, имеет вид

$$H = H_0 \sum_i \left[g^{+z}(\mathbf{r}_i)S_i^- + g^{-z}(\mathbf{r}_i)S_i^+\right] , \qquad (2)$$

где $S^{\pm} = S_x \pm iS_y$, S_x и S_y — проекции спина электрона на оси X и Y соответственно; $g^{\pm z}$ — симметричный g-тензор второго ранга; H_0 — постоянное магнитное поле, направленное вдоль оси Z; $\mathbf{r}_i$ — радиус-вектор примеси, образующей ДУС. Представим его в виде

$$\mathbf{r}_i = \mathbf{r}_{i0} + \mathbf{u}_i + \mathbf{d}_i l_i^z , \qquad (3)$$

где $\mathbf{u}_i$ — относительное смещение ПЦ и начала координат при колебаниях решетки, $|\mathbf{d}_i|$ — расстояние между минимумами двухъямной потенциальной ямы, между которыми происходит туннелирование ПЦ; $\mathbf{r}_{i0}$ — радиус-вектор точки, лежащей посередине между двумя минимумами потенциальной ямы; l_i^z — псевдоспин со свойствами спина $1/2$, описывающий ДУС. Учитывая, что $|\mathbf{u}_i|$, $|\mathbf{d}_i| << a$ (a — среднее расстояние между атомами), и разлагая $g^{\pm z}(\mathbf{r}_i)$ по степеням $|\mathbf{u}_i|/a$; $|\mathbf{d}_i|/a$, в собственном представлении ДУС для гамильтониана, описывающего процесс релаксации электронного спина с участием ДУС и фонона, получаем выражение

$$H_{sdp} = \frac{i}{2} H_0 \left(\frac{\hbar}{2MV^2}\right)^{1/2} \sum_{iq} (\omega_\mathbf{q})^{1/2}\, e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}_i} (a_\mathbf{q} - a_{-\mathbf{q}}^+)(D_i^{+z}S_i^- + D_i^{-z}S_i^+)(l_i^z \cos\theta_i - l_i^x \sin\theta_i) , \qquad (4)$$

где

$$D_i^{\pm z} = \sum_{\alpha\beta\gamma} (\lambda_\beta f_\gamma + \lambda_\gamma f_\beta)\, \frac{1}{2} \left(\left.\frac{\partial^2 g^{\pm z}(\mathbf{r}_i)}{\partial r_i^\alpha \partial r_i^\beta}\right|_{\mathbf{r}_i=\mathbf{r}_{i0}} r_i^\gamma + \left.\frac{\partial^2 g^{\pm z}(\mathbf{r}_i)}{\partial r_i^\alpha \partial r_i^\gamma}\right|_{\mathbf{r}_i=\mathbf{r}_{i0}} r_i^\beta \right) d_i^\alpha ,$$

M — масса кристалла; V — скорость звука в образце; $a_\mathbf{q}^+$ и $a_\mathbf{q}$ — операторы рождения и уничтожения фононов с волновым вектором $\mathbf{q}$; $\omega_\mathbf{q}$ — частота фонона; λ_α — направляющие косинусы вектора поляризации; $\mathbf{f}$ — орт волнового вектора $\mathbf{q}$; $\cos\theta_i = \sqrt{\varepsilon_i^2 - \Delta_{0i}^2}/\varepsilon_i$, $\sin\theta_i = \Delta_{0i}/\varepsilon_i$, $\varepsilon_i = \sqrt{\Delta_{0i}^2 + \Delta_i^2}$ — энергия ДУС, Δ_{0i} — энергия туннелирования [1].

Рассмотрим процесс электронной спин-решеточной релаксации, обусловленной взаимодействием (4). Полный гамильтониан системы имеет вид

$$H = H_0 + H_{sdp} ,$$

$$H_0 = \hbar\omega_s \sum_i S_i^z + \hbar \sum_n \varepsilon_n l_n^z + \hbar \sum_\mathbf{q} \omega_\mathbf{q} a_\mathbf{q}^+ a_\mathbf{q} ,$$

ω_s — зеемановская частота. В случае, когда $\omega_s << \omega_m$ и электронная спин-решеточная релаксация в основном определяется пропорциональной l_i^x частью гамильтониана (4), так как в процессе релаксации, обусловленной частью гамильтониана (4), пропорциональной l_i^z , основную роль будут играть фононы с частотой порядка $\omega_s + 1/\tau$, τ — время корреляции*. Поскольку $\omega_s >> 1/\tau$, в процессе спин-решеточной релаксации участвуют практически только фононы с частотой ω_s . Следовательно, в данном случае число участвующих в процессе фононов крайне ограничено.

* Время корреляции τ определяется корреляционной функцией $\langle\delta l_i^z \delta l_i^z(t)\rangle / \langle\delta l_i^z \delta l_i^z\rangle$, δl_i^z — флуктуация l_i^z [8].

Вычислим скорость электронной спин-решеточной релаксации с помощью неравновесного статистического оператора Зубарева [9]. Полагаем, что время, за которое спиновая система полностью приходит в равновесие, значительно меньше времени спин-решеточной релаксации. Построим неравновесный статистическй оператор:

$$\rho = Q^{-1} \exp\left\{-\beta_s\,\hbar\omega_s \sum_i S_i^z - \beta_l\left(\hbar\sum_n \varepsilon_n l_n^z + \hbar\sum_{\mathbf{q}} \omega_{\mathbf{q}} a_{\mathbf{q}}^+ a_{\mathbf{q}}\right) - (\beta_l - \beta_s)\int_{-\infty}^{0} e^{\varepsilon t} K(t)\,dt\right\}, \qquad (5)$$

где $Q^{-1} = \mathrm{Sp}\,\rho$; β_l и β_s — обратные температуры решетки и спиновой системы; $K(t) = e^{iHt} K\, e^{-iHt}$ — термодинамическй поток

$$K = \frac{1}{\hbar}\left[H_{sdp}, \hbar\omega_s \sum_i S_i^z\right]$$

в представлении взаимодействия. Считая последнее слагаемое в показателе экспоненты (5) малым по сравнению с двумя первыми, разложим в ряд по степеням K и ограничимся линейным членом. После несложных вычислении [10] получаем

$$\frac{d\beta_s}{dt} = -\frac{\beta_s - \beta_l}{T_e}, \qquad (6)$$

$$\frac{1}{T_e} = \left(\beta_l \frac{\partial\langle\hbar\omega_s \sum_i S_i^z\rangle}{\partial\beta_l}\right)^{-1} \int_0^{\beta_l} d\lambda \int_{-\infty}^{0} e^{\varepsilon t}\langle K_0(t - i\lambda)K\rangle\, dt,$$

где

$$K_0(t - i\lambda) = e^{iH_0(t-i\lambda)}\, K\, e^{-iH_0(t-i\lambda)},$$

$$\langle\ldots\rangle = \frac{\mathrm{Sp}\,(e^{-\beta_l H}\ldots)}{\mathrm{Sp}\, e^{-\beta_l H}}.$$

С учетом формул (1) и (6) для скорости электронной спин-решеточной релаксации (ЭСРР) в высокотемпературном приближении ($\hbar\omega_s << k_B T$) окончательно получаем

$$\frac{1}{T_e} = \frac{9}{4}\pi\left(\frac{\hbar}{2mV^2}\right)\frac{H_0^2}{\omega_D^3}\,\overline{P}(I_1 + I_2)\,\frac{\sum_i |D_i^{+z}|}{N_s}\,\frac{1}{\hbar}, \qquad (7)$$

$$I_1 = \int_0^{\omega_D} \frac{\omega^2\sqrt{\omega^2 - \Delta_0^2}}{\mathrm{sh}\,\frac{\hbar\omega}{k_B T}}\, d\omega,$$

$$I_2 = \mu\omega_m^2 \int_0^{\omega_D} \frac{\sqrt{\omega^2 - \Delta_0^2}}{\mathrm{sh}\,\frac{\hbar\omega}{k_B T}} \exp\left(-\frac{\ln^2 \omega/\omega_m}{2\sigma^2}\right) d\omega,$$

где m — масса атома, N_s — концентрация парамагнитных центров, Δ_0 — минимальное значение энергии туннелирования, $\overline{P}$ — плотность состояний ДУС по энергии.

С помощью численного интегрирования можно показать, что $I_1 < I_2$ в температурной области $1\ \mathrm{K} < T < 5\ \mathrm{K}$ при $\mu = 10$, $\omega_m = 5\cdot10^{11}$ Гц, $\omega_D = 1{,}4\cdot10^{13}$ Гц, $\sigma = 0{,}48$. Следовательно, в данном интервале температур основную роль играют фононы из области бозонного пика. Температурная зависимость интегралов I_1 и I_2 показана на рис. 1. Легко проверить, что $I_1 \approx T^4$, а I_2 пропорционально T^2. Аналогичная температурная зависимость спин-решеточной релаксации экспериментально наблюдалась в работе [11]. Сравним полученную скорость спин-решеточной релаксации (7) с однофононным механизмом релаксации, так как в отмеченной температурной области основную роль играют однофононные процессы.

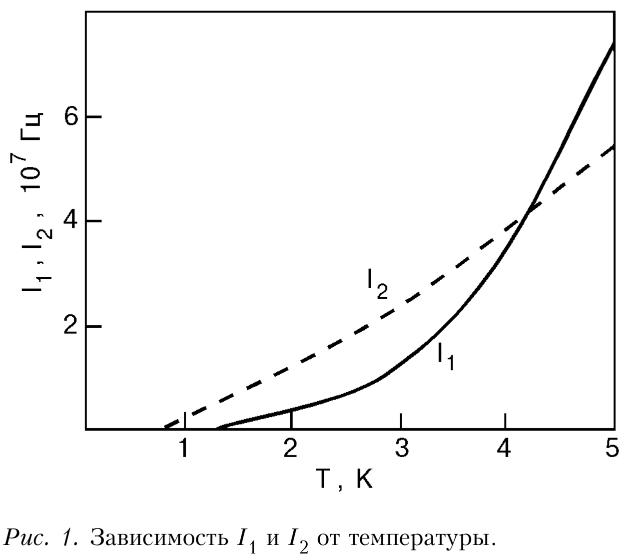

Рис. 1. Зависимость I_1 и I_2 от температуры.

Однофононная ЭСРР описывается гамильтонианом

$$H_{sp} = \frac{i}{2} H_0 \frac{1}{2} \left(\frac{\hbar}{2MV^2} \right)^{1/2} \times$$

$$\times \sum_i \sum_{\mathbf{q}} (\omega_{\mathbf{q}})^{1/2} e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}_i} (a_{\mathbf{q}} - a^+_{-\mathbf{q}})(J_i^{+z} S_i^- + J_i^{-z} S_i^+) ,$$

где

$$J_i^{\pm z} = \sum_{\alpha\gamma} (\lambda_\alpha f_\gamma + \lambda_\gamma f_\alpha) \left(\left. \frac{\partial g^{\pm z}}{\partial \mathbf{r}_i^\alpha} \right|_{\mathbf{r}_i = \mathbf{r}_{i0}} \mathbf{r}_i^\gamma + \left. \frac{\partial g^{\pm z}}{\partial \mathbf{r}_i^\gamma} \right|_{\mathbf{r}_i = \mathbf{r}_{i0}} \mathbf{r}_i^\alpha \right) .$$

Для скорости ЭСРР в высокотемпературном приближении ($\hbar\omega_s < k_B T$) имеем

$$\frac{1}{T_{sp}} \approx \frac{9}{4} \pi H_0^2 \frac{\sum_i |J_i^{+z}|^2}{N_s} \frac{1}{2mV^2\hbar} \frac{k_B T}{\hbar\omega_s} \left(\frac{\omega_s}{\omega_d} \right)^3 . \quad (8)$$

Для отношений скоростей релаксации в температурном интервале $T < 5$ K и при отмеченных выше параметрах с учетом (8) имеем

$$\frac{1}{T_e} \Big/ \frac{1}{T_{sp}} = \frac{\hbar^2}{2} \frac{\overline{P}}{k_B T} \mu \left(\frac{\omega_m}{\omega_s} \right)^2 \times$$

$$\times \frac{\sum_i |D_i^{+z}|^2}{\sum_i |J_i^{+z}|^2} \int_0^{\omega_D} \frac{\sqrt{\omega^2 - \Delta_0^2}}{\operatorname{sh} \dfrac{\hbar\omega}{k_B T}} \exp \left(- \frac{\ln \omega/\omega_m}{2\sigma^2} \right) d\omega .$$

На рис. 2 приведена температурная зависимость отношения скоростей релаксации $(1/T_e)/(1/T_{sp})$ для параметров $\overline{P} \approx 10^{21}$ Дж$^{-1}$, $\omega_m = 5 \cdot 10^{11}$ Гц, $\omega_D \approx 1{,}4 \cdot 10^{13}$ Гц, $\sigma \approx 0{,}48$, $\omega_s \approx 10^9$ Гц, $\mu \approx 10$ и отношения

$$\frac{\sum_i |D_i^{+z}|^2}{\sum_i |J_i^{+z}|^2} \approx \left(\frac{d}{a} \right)^2 \approx 0{,}1 .$$

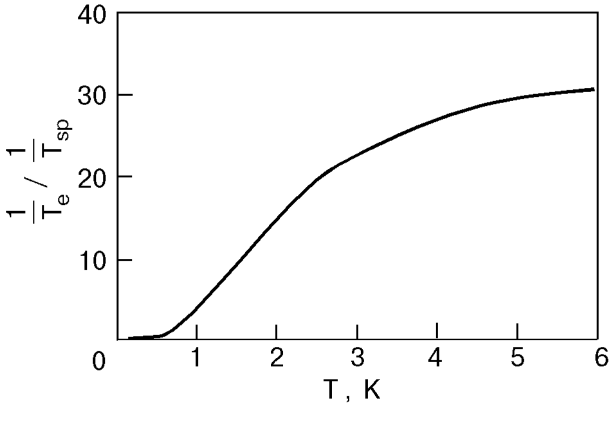

Рис. 2. Зависимость отношения $\frac{1}{T_e} \Big/ \frac{1}{T_{sp}}$ от температуры.

Из рис. 2 следует, что в температурном интервале 1 K < T < 5 K скорость ЭСРР определяется главным образом двухквантовым процессом релаксации, в котором участвуют ДУС и фононы из области бозонного пика.

1. P. Anderson, B. Halperin, and G. Varma, *Philos. Mag.* **25**, 1 (1972); W. Phillips, *J. Low. Temp. Phys.* **7**, 351 (1972).
2. T. L. Reinecke and K. L. Ngai, *Phys. Rev.* **B12**, 3476 (1975); G. Balzer-Jollenbeck, O. Kanert, and J. Steinert, *Solid State Commun.* **65**, 303 (1988); J. Szeftel and H. Alloul, *Phys. Rev. Lett.* **34**, 657 (1975).
3. S. R. Kurtz and H. J. Staplton, *Phys. Rev.* **B22**, 2195 (1979).
4. В. К. Малиновский, В. И. Новиков, А. П. Соколов, *УФН* **163**, 119 (1993); V. K. Malinovski and A. P. Sokolov, *Solid State Commun.* **57**, 757 (1986); A. Fontana and F. Rossi, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 1078 (1997).
5. Н. П. Гиоргадзе, Л. З. Захаров, *ФНТ* **24**, 262 (1998).
6. А. А. Лебанидзе, Т. Л. Буишвили, Г. Р. Какабадзе, *Биофизика* **42**, 811 (1997).
7. С. А. Альтшулер, Б. М. Козырев, *Электронный парамагнитный резонанс соединений элементов промежуточных групп*, Наука, Москва (1972).
8. J. Szeftel and H. Alloul, *J. Non-Crystal Solids* **29**, 253 (1978).
9. Д. Н. Зубарев, *Неравновесная статистическая термодинамика*, Наука, Москва (1971).
10. И. В. Александров, *Теория магнитной релаксации*, Наука, Москва (1975).
11. G. Grandl and J. Friedrich, *Phys. Rev.* **B35**, 4915 (1987).

Two-quantum electron spin-lattice relaxation in amorphous solids

L. G. Zakharov, L. L. Chotorlishvili, and T. L. Buishvili

The two-quantum process of electron spin-lattice relaxation in amorphous solids is investigated. The relaxation process caused by tunneling two-level systems and phonons of boson peak are considered. It is shown that in some conditions this mechanism is efficient.