Физика низких температур, 1997, т. 23, № 4, с. 402–408

Релаксация далеких ядер в твердом теле при сверхнизких температурах через дипольный резервуар собственных ядер парамагнитных центров

Д. А. Костаров, Н. П. Фокина

Тбилисский государственный университет им. И. Джавахишвили,
Грузия, 380028, г. Тбилиси, пр. И. Чавчавадзе, 3
E-mail: faculty@tsu.ge

Статья поступила в редакцию 17 июня 1996 г., после переработки 4 ноября 1996 г.

Абрагам с соавторами (*Physica* B81, 245 (1976)) предложили механизм релаксации далеких ядер через диполь-дипольный резервуар (ДДР) собственных ядер парамагнитных центров, не «замораживающийся» при сверхнизких температурах. Для доказательства возможности такого процесса было показано, что из-за перемешивания электронных и ядерных спиновых состояний вследствие сверхтонкого взаимодействия матричные элементы флип-флопов собственных ядер действительно являются электронными матричными элементами. Это эквивалентно увеличению теплоемкости («утяжелению») ДДР собственных ядер. Такой «утяжеленный» ДДР далее играет роль термодинамической подсистемы, через которую далекие ядра релаксируют в решетку, причем узкое горло имеется на втором участке релаксации. Поскольку этот механизм может играть доминирующую роль в низкотемпературной ядерной релаксации и в других процессах, представляет интерес получить гамильтониан «утяжеленного» ДДР в явном виде, вычислить его теплоемкость и оценить эффективную скорость релаксации далеких ядер через ДДР собственных ядер, что и выполнено в настоящей работе.

Абрагам із співавторами (*Physica* B81, 245 (1976)) запропонували механізм релаксації далеких ядер через диполь-дипольний резервуар (ДДР) власних ядер парамагнітних центрів, який не «заморожується» при наднизьких температурах. Для доказу можливості такого процесу ними було показано, що через перемішування електронних та ядерних спінових станів внаслідок надтонкої взаємодії матричні елементи фліп-флопів власних ядер дійсно є електронними матричними елементами. Це еквівалентно збільшенню теплоємності («обважненого») ДДР власних ядер. Такий «обважнений» ДДР далі грає роль термодинамічної підсистеми, через яку далекі ядра релаксують в гратку, причому вузьке горло присутнє на другій ділянці релаксації. Оскільки цей механізм може грати домінуючу роль в низькотемпературній ядерній релаксації і в інших процесах, викликає інтерес одержання гамільтоніана «обважненого» ДДР власних ядер в явному вигляді, обчислення його теплоємності та оцінення ефективної швидкості релаксації далеких ядер через ДДР власних ядер, що і виконано в даній роботі.

PACS: 76.20.+q

Введение

Напомним сначала некоторые аспекты квазитермодинамического описания процессов ядерной релаксации в разбавленных парамагнитных кристаллах, обусловленной сверхтонким взаимодействием (СТВ).

Поскольку в таких кристаллах на каждый парамагнитный центр (ПЦ) приходится много ядер, а СТВ существенно зависит от расстояния между ядерными спинами и ПЦ, степень влияния электронных спинов на спектр ЯМР и ядерных спинов на спектр ЭПР также зависит от этого расстояния. Введем важные для дальнейшего изложения понятия близких и далеких ядер, используя в качестве критерия степень воздействия СТВ на электронный спектр. Ядра, расположенные близко к ПЦ и характеризуемые большими константами СТВ, которое смещает зеемановские уровни ПЦ на величину, превышающую их однородную ширину, будем называть близкими. При теоретическом рассмотрении по крайней мере диагональная часть СТВ с участием близких ядер включается в основной гамильтониан. Ядра, удаленные от ПЦ настолько, что СТВ с их участием сдвигает электронные уровни на величину, меньшую электронной ширины Δ_e, будем называть далекими (в этом случае СТВ является возмущением основного гамильтониана). Поскольку в разбавленных парамагнитных кристаллах далеких ядер гораздо больше, чем близких, их также называют объемными.

Большое число работ [1–4] посвящено роли электронного диполь-дипольного резервуара

© Д. А. Костаров, Н. П. Фокина, 1997

(ЭДДР) в релаксации и динамической поляризации далеких ядер в разбавленных парамагнитных кристаллах. Эта роль обусловлена тем, что корреляционная функция z-компоненты электронных спинов, определяемая их флип-флопами, имеет отличную от нуля фурье-компоненту на резонансной частоте далеких от ПЦ ядер. В результате ЭДДР является посредником при передаче энергии от далеких ядер к решетке при их релаксации и от СВЧ поля к далеким ядрам при их динамической поляризации; через ЭДДР также происходит тепловое смешивание различных сортов далеких ядер. Скорость релаксации зеемановской подсистемы далеких ядер к ЭДДР пропорциональна множителю

$$\langle(\delta S_i^z)^2\rangle_S = \langle(S_i^z)^2\rangle_S - \langle S_i^z\rangle_S^2 ,$$

где $\delta S_i^z = S_i^z - \langle S_i^z\rangle_S$ — флуктуация z-проекции электронного спина, находящегося в i-м узле решетки. При высоких температурах этот множитель (для $S = 1/2$ множитель $\langle(\delta S_i^z)^2\rangle = (1 - p_S^2)/4$, p_S — электронная поляризация) имеет порядок единицы, однако при сверхнизких температурах, когда $k_B T_L \ll \hbar\omega_S$, где ω_S — электронная резонансная частота; T_L — температура решетки, он становится исчезающе малым и процессы релаксации далеких ядер, связанные с ЭДДР, должны полностью «заморозиться». Однако так как в эксперименте наблюдаются конечные времена ядерной релаксации, то были выдвинуты альтернативные механизмы релаксации [5–8], не «замораживающиеся» вплоть до микрокельвиновых температур. В частности, в [8] была исследована спин-решеточная релаксация протонов в этилсульфате гольмия (ЭСГ), которая обнаружила ее «фантастически быструю скорость равно как и замечательно слабую зависимость от температуры». Авторы [8] объяснили результаты своих экспериментов, введя новый механизм релаксации далеких ядер (протонов) через ДДР собственных ядер* парамагнитных центров, т.е. через ДДР ядер ^{165}Ho, принадлежащих ионам Ho^{3+}. (Этому «интересному примеру ядерной релаксации» посвящена также с. 106 монографии [13].)

На первый взгляд, такой механизм не может быть эффективным, так как время корреляции z-компоненты собственных ядерных спинов, обусловленное их флип-флопами, слишком велико, чтобы обеспечивать перевороты далеких ядерных спинов в сильном постоянном магнитном поле. Однако Абрагамом с сотрудниками [8] было указано, что вероятность флип-флопов собственных ядер действительно значительно увеличена благодаря сильному сверхтонкому взаимодействию (СТВ) этих ядер с электронными спинами, совершающими флип-флопы, обусловленные их диполь-дипольным взаимодействием, с гораздо большей скоростью, чем ядра. Усиление вероятности флип-флопов собственных ядерных спинов можно представить следующим образом: ядро иона 1 совершает флип-флоп с электронным спином своей оболочки благодаря СТВ с константой A, электронный спин 1 совершает виртуальный флип-флоп с электронным спином иона 2 благодаря их диполь-дипольному взаимодействию с константой U, а ион 2, в свою очередь, — с собственным ядром. Результатом являются флип-флопы собственных ядерных спинов, обусловленные не их диполь-дипольным взаимодействием u, а вызванные виртуальными электронными флип-флопами и усиленные приблизительно в $A^2U/\hbar^2\omega_S^2 u$ раз.

Следовательно, время корреляции z-компоненты спинов собственных ядер будет сильно уменьшено, и соответствующая корреляционная функция имеет отличную от нуля фурье-компоненту на частоте далеких ядер. В то же время резонансная частота собственных ядер, определяемая константой СТВ, как правило, намного меньше ω_S, поэтому их поляризация гораздо меньше электронной, и множитель $\langle(\delta I_i^z)^2\rangle_I$, фигурирующий в скорости непосредственной релаксации далеких ядер к ДДР собственных ядер, отличен от нуля даже при сверхнизких температурах. В результате скорость теплового смешивания зеемановской подсистемы далеких ядер и ДДР собственных ядер, по оценкам [8], оказывается настолько большой, что узким горлом в процессе релаксации далеких ядер является релаксация этой объединенной подсистемы к решетке. Тогда, как известно [3], эффективная скорость релаксации далеких ядер пропорциональна отношению $C_{II}/C_F + C_{II}$, где C_F и C_{II} — теплоемкости зеемановской подсистемы и ДДР соответственно. Это отношение должно быть не слишком малым, поскольку экспериментально наблюдаемая скорость релаксации протонов являет-

* Роль собственных ядер, по-видимому, могут играть и достаточно близкие к ПЦ ядерные спины, если собственные ядра ПЦ не магнитны.

ся довольно быстрой. Выполнение такого условия тоже обеспечивается «утяжелением» ДДР с учетом вклада от дипольно связанных электронных спинов, передаваемого к ядрам с помощью СТВ.

В [8] выполнена оценка эффективной скорости релаксации далеких ядер на основе вычисления матричных элементов перехода между двумя ядерными уровнями во втором порядке теории возмущений по константам СТВ и первом по электронному диполь-дипольному взаимодействию. Однако представляет интерес нахождение в явном виде гамильтониана «утяжеленного» ДДР собственных ядер, вычисление его теплоемкости, а также рассмотрение релаксации далеких ядер к решетке через ДДР и сравнение полученных результатов с теоретическими оценками работы [8]. Решению указанной задачи и посвящена настоящая работа.

Получение гамильтониана «утяжеленного» диполь-дипольного резервуара собственных ядер

С учетом эксперимента в [8] рассмотрим электронно-ядерную спиновую систему твердого неразбавленного парамагнетика, состоящую из пар «электронный спин + спин собственного ядра ПЦ» и далеких ядерных спинов, помещенную в постоянное магнитное поле с индукцией $\mathbf{B}_0 \parallel z \parallel c$, где c — главная кристаллографическая ось кристалла. Отметим, что в ситуации в [8] спин иона Ho^{3+} S равен 1, а спин ядра ^{165}Ho I равен 7/2, однако, не ставя целью количественное сравнение с результатами [8], будем считать спины пар равными половине ($S = I = 1/2$). В случае необходимости результаты могут быть получены для конкретного эксперимента. Гамильтониан такой спин-системы запишем в виде

$$H = \hbar\omega_S^* S^z - \hbar\omega_I^* I^z + A_\parallel \sum_i S_i^z I_i^z +$$

$$+ \frac{A_\perp}{2} \sum_i (S_i^+ I_i^- + S_i^- I_i^+) - \hbar\omega_F I_F^z + H_{SS}^* + H_{II}^* +$$

$$+ \frac{1}{2} \sum_{ni} (V_{ni}^{+z} I_{Fn}^+ + V_{ni}^{-z} I_{Fn}^-) I_i^z + \frac{1}{2}(S^+ L^- + S^- L^+). \qquad (1)$$

Здесь первые три члена представляют собой основной гамильтониан электронно-ядерных пар; $A_\parallel$ — продольная константа СТВ; 4-й член — поперечное СТВ; $\omega_{S,I} = \gamma_{S,I} B_0$, где γ_S — абсолютное значение гиромагнитного отношения электронов; γ_I — гиромагнитное отношение собственных ядер; $\omega_F = \gamma_F B_0$ — зеемановская энергия далеких ядер. Секулярная по отношению к первым трем членам гамильтониана (1) часть диполь-дипольного взаимодействия электронных спинов после отделения членов, соответствующих их однородной прецессии [9], образует переопределенный ЭДДР с гамильтонианом H_{SS}^*. Секулярное диполь-дипольное взаимодействие собственных ядер после аналогичной операции составляет переопределенный ДДР с гамильтонианом H_{II}^*, имеющим следующий вид:

$$H_{SS}^* = \frac{1}{2} \sum_{i,j(\neq)} \left\{ (U_{ij}^{zz} - U_0^{zz}) S_i^z S_j^z + \frac{1}{2}(U_{ij}^{+-} - U_0^{+-}) \times \right.$$

$$\left. \times (S_i^+ S_j^- + S_i^- S_j^+)(I_i^z + I_j^z)^2 \right\}, \qquad (2)$$

где

$$U_{ij}^{zz} = -2U_{ij}^{+-} = \frac{\hbar\gamma_S^2(1 - 3\cos^2\theta_{ij})}{r_{ij}^3};$$

$$U_0^{zz,+-} = N^{-2} \sum_{i,j(\neq)} U_{ij}^{zz,+-};$$

r_{ij} — расстояние между i- и j-электронными спинами; θ_{ij} — угол между $\mathbf{r}_{ij}$ и $\mathbf{B}_0$; N — число электронно-ядерных пар; H_{II}^* получается заменой в H_{SS}^* операторов S_i^α на I_i^α ($\alpha = x, y, z$) и констант $U_{ij}^{zz,+-}$ на $u_{ij}^{zz} = -2u_{ij}^{+-} = [\hbar\gamma_I^2(1 - 3\cos^2\theta_{ij})]/r_{ij}^3$. Отличие от работы [9] заключается в том, что так как уровни электронно-ядерной пары расщеплены сильным СТВ, то секулярными будут только флип-флопы электронных и ядерных спиновых пар, находящихся в состояниях с одинаковым направлением соответственно ядерного и электронного спинов. Как показано в [10], такое ограничение можно учесть, умножив члены диполь-дипольного взаимодействия, описывающие флип-флопы, на $(I_i^z + I_j^z)^2$ и $(S_i^z + S_j^z)^2$ соответственно. Наконец, последние члены (1) представляют собой часть диполь-дипольного взаимодействия далеких ядер с собственными, секулярную по собственным ядрам, и электронное спин-решеточное взаимодействие.

Для того чтобы учесть «утяжеление» ДДР собственных ядер вкладом от электронных диполь-дипольных взаимодействий, передаваемым с помощью СТВ, произведем в гамильтониане (1) следующие преобразования: записав (1) во вращающейся относительно электронных спинов с частотой ω_S системе координат, представим результат

в виде ряда Фурье $H^* = \sum_k H_k e^{i\omega k^t}$, где отличными от нуля будут члены с $k = 0, \pm 1$ (соответственно $\omega_0 = 0$, $\omega_1 = \omega_S$, $\omega_{-1} = -\omega_S$), затем перейдем к эффективному гамильтониану [11], соответствующему второму порядку теории возмущений по малому параметру $|A_\perp / \hbar\omega_S|$:

$$\overline{H} = H_0 + \sum_{k\neq 0} \frac{1}{2\hbar\omega_k}[H_k, H_{-k}] - \frac{1}{3}\sum_{\omega_{m+k}\neq 0}^{\omega_m\neq 0} \frac{1}{\hbar^2\omega_m\omega_{m+k}}\left[H_{-m-k}, [H_m, H_k]\right] - \frac{1}{2}\sum_{\omega_k\neq 0}\frac{1}{\hbar^2\omega_k^2}\left[H_k[H_k, H_0]\right]. \quad (3)$$

Используя эту формулу и учитывая, что вклад первого порядка по $A_\perp / \hbar\omega_S$, даваемый вторым членом формулы (3), обусловливает лишь несущественные добавки к ω_S и ω_I, получаем следующее выражение для интересующего нас эффективного гамильтониана ДДР собственных ядер:

$$H_{II}^{\text{eff}} = \frac{1}{2}\sum_{i,j(\neq)}\left\{\frac{1}{2}(u_{ij}^{zz} - u_0^{zz})I_i^z I_j^z + \frac{1}{2}(u_{ij}^{+-} - u_0^{+-})\right\} \times \left[\left(1 + \frac{A_\perp^2(U_{ij}^{zz} - U_0^{zz})}{3(\hbar\omega_S)^2(u_{ij}^{+-} - u_0^{+-})}\right) S_i^- S_j^+ (I_i^z + I_j^z)^2 + \frac{A_\perp^2(U_{ij}^{+-} - U_0^{+-})}{3(\hbar\omega_S)^2(u_{ij}^{+-} - u_0^{+-})} 2S_i^z S_j^z\right) I_i^+ I_j^- (S_i^z + S_j^z)^2 + \text{э.с.}\Bigg]. \quad (4)$$

Будем считать справедливым высокотемпературное приближение по температуре ДДР. Тогда его средняя энергия приближенно равна

$$\overline{H_{II}^{\text{eff}}} = -\frac{1}{k_B T_{II}}\langle (H_{II}^{\text{eff}})^2\rangle_I ,$$

где T_{II} — температура ДДР собственных ядер; $\langle \ldots \rangle_I$ обозначает усреднение с зеемановским больцмановским фактором собственных ядер. Величина $\hbar^2(\omega_I^{\text{eff}})^2 = \langle (H_{II}^{\text{eff}})^2\rangle_I / (N/4)$ имеет смысл квадрата среднего кванта «утяжеленного» ДДР. Вычисление с помощью гамильтониана (4) дает для нее значение

$$(\omega_{II}^{\text{eff}})^2 = \frac{2}{3}(1 - p_I^2)\left(1 + \frac{1 + p_S^2}{4} - p_I^2\right)\omega_{II}^2 + \frac{1}{12}\left(\frac{A_\perp^2}{3(\hbar\omega_S)^2}\right)^2 (1 - p_S^4)(1 - p_I^4)\omega_{SS}^2 + \frac{1}{96}\left(\frac{A_\perp^2}{3(\hbar\omega_S)^2}\right)^2 (1 + p_S^2)(1 - p_I^2)\omega_{SS}^2 , \quad (5)$$

где $p_I = \text{th}\,(\hbar\omega_I / 2k_B T_I)$ — поляризация собственных ядер; $p_S = -\text{th}\,(\hbar\omega_S / 2k_B T_S)$ — поляризация электронных спинов; $(\hbar\omega_{SS})^2 = 3/16 \sum_j (U_{ij}^{zz})^2$ и $(\hbar\omega_{II})^2 = 3/16 \sum_j (u_{ij}^{zz})^2$ — квадраты средних квантов ДДР электронных и ядерных спинов соответственно при бесконечной температуре в случае, когда они не образуют пары.

Поскольку при сверхнизких температурах $|p_S| \approx 1$, уравнение (5) можно записать в следующем виде*:

$$(\omega_{II}^{\text{eff}})^2 \approx (1 - p_I^2)(1 - 2/3\, p_I^2)\omega_{II}^2 \times \left\{1 + \frac{1}{432}\left(\frac{A_\perp}{\hbar\omega_I}\right)^4 \frac{1}{1 - 2/3\, p_I^2}\right\}. \quad (6)$$

3. Релаксация далеких ядер через диполь-дипольный резервуар собственных ядер

Поскольку для собственных ядер $A_\perp >> \hbar\omega_I$, второй член в фигурных скобках (6) больше первого, т.е. вклад от электронного диполь-дипольного взаимодействия в ДДР будет бóльшим, чем от аналогичного ядерного. Благодаря этому вкладу эффективное диполь-дипольное взаимодействие собственных ядер, по оценкам [8], может оказаться настолько сильным, что флуктуирующее поле, создаваемое собственными ядрами на далеких ядрах, может перевернуть далекое ядро. Этот процесс описывается предпоследним членом в (1) и обусловливает релаксацию далеких ядер к ДДР, полностью аналогичную хорошо известной [1–4] непосредственной релаксации далеких ядер к ЭДДР. Соответствующая скорость релаксации имеет вид

* Отметим во избежание путаницы, что фигурировшая в (6) зеемановская частота ω_I собственных ядер не является их резонансной частотой (последняя в рассматриваемой модели приближенно равна $A_\parallel / 2\hbar >> \omega_I$); ω_I в (6) появляется из тождества $\omega_{SS}^2 / \omega_S^4 = \omega_{II}^2 / \omega_I^4$. При произвольных расщеплениях ЭПР Δ следует пользоваться общей формулой (5) с заменой $\omega_S \to \Delta$.

$$\frac{1}{T_{FII}} = \frac{\pi(1-p_I^2)}{4\hbar^2} |V^{+z}|^2 \varphi_{II}^{zz}(\omega_F) , \qquad (7)$$

где $|V^{+z}|^2 = 1/N_F \sum_{in} |V_{ni}^{+z}|^2$; N_F — число далеких ядер; $\varphi_{II}^{zz}(\omega_F)$ — фурье-компонента на частоте далеких ядер временной корреляционной функции флуктуаций z-компоненты собственных ядерных спинов:

$$\varphi_{II}^{zz}(t) = \frac{\langle \delta I_i^z(t) \delta I_i^z \rangle_I}{\langle (\delta I_i^z)^2 \rangle_I} , \qquad (8)$$

где $\langle (\delta I_i^z)^2 \rangle_I = (1-p_I^2)/4$, временная зависимость в (8) определяется эффективным секулярным диполь-дипольным гамильтонианом собственных ядер (4). Релаксация далеких ядер к ДДР, в отличие от их релаксации к ЭДДР, не «замораживается» при сверхнизких температурах, так как роль электронных спинов теперь играют собственные ядра, обладающие при данной температуре гораздо меньшей поляризацией, чем электронные спины. Предположим, следуя [8], что далекие ядра настолько быстро приходят в равновесие с ДДР собственных ядер, что эффективная скорость релаксации определяется релаксацией объединенной подсистемы (зеемановской + ДДР) к решетке. Эта скорость имеет вид

$$\left(\frac{1}{T_F}\right)_{\text{eff}} = \frac{C_{II}}{C_{II}+C_F} \frac{1}{T_{IIL}} = \frac{x^2/33}{1+x^2/33} \frac{1}{T_{IIL}} , \qquad (9)$$

где $x^2 = (\omega_{II}^{\text{eff}}/\omega_F)^2$ и учтено, что $N : N_F = 1 : 33$; T_{IIL}^{-1} — скорость релаксации ДДР собственных ядер к решетке.

Обсудим теперь механизм теплового контакта ДДР — решетка. Здесь необходимо отметить, что при высоких температурах ядерная дипольная релаксация определяется СТВ вида $V_{ii}^{zz} I_i^z S_i^z$. При этом «легкий» ядерный ДДР, как правило, закорочен на электронный [3]. Поскольку эта релаксация (как и ядерная зеемановская) определяется, в частности, корреляционной функцией z-составляющей электронного спина, при низких температурах содержащийся в ее скорости множитель $\langle (\delta S_i^z)^2 \rangle_S$ стремится к нулю, и ядерная дипольная релаксация к ЭДДР, находящемуся в рассматриваемом масштабе времени уже в равновесии с решеткой, должна «заморозиться». Поэтому в [8] как для релаксации зеемановской подсистемы собственных ядер, так и их ДДР предложен механизм, при котором переворот собственного ядерного спина сопровождается переворотом электронного спина. Последний возвращается в исходное состояние, обменявшись энергией с решеткой, и в результате происходит обмен энергией ядерного спина с решеткой. Такой обмен обусловливает релаксацию зеемановской подсистемы собственных ядер и их ДДР к решетке. Соответствующее косвенное взаимодействие описывается следующим эффективным гамильтонианом, получаемым из слагаемых (1), описывающих поперечное СТВ и электронное спин-решеточное взаимодействие во вращающейся системе координат с помощью первых двух членов формулы (3) (см. также работу [7]):

$$H_{II}^{\text{eff}} = \frac{A_\perp}{2\hbar\omega_S} \sum_i S_i^z (L^+ I_i^- + L^- I_i^+) , \qquad (10)$$

где $L^\pm$ — решеточные операторы. Уравнение для релаксации зеемановской подсистемы собственных ядер, управляемой гамильтонианом (10), где флуктуации оператора S_i^z считаются «замороженными», имеет вид

$$\frac{dp_I}{dt} = -\frac{1}{T_{IL}} (p_I - p_{IL}) , \qquad (11)$$

где

$$\frac{1}{T_{IL}} = \frac{K}{T_{SL}} ,$$

$$K = \frac{1}{4} \left(\frac{A_\parallel}{2\hbar\omega_S} \right)^3 \frac{\text{th}\,(\hbar\omega_S/2k_B T_L)}{\text{th}\,(A_\parallel/2k_B T_L)} \frac{A_\perp^2}{(\hbar\omega_S)^2} ;$$

T_{SL}^{-1} — скорость однофононной электронной спин-решеточной релаксации, индексом «L» отмечены поляризации при температуре решетки. Для получения соответствующего уравнения релаксации ДДР учтем, что взаимодействие (10) формально имеет такой же вид, как и обычное электронное спин-решеточное взаимодействие. Поэтому можно использовать результаты работ [12,13], где из общих выражений работы [9] при малых отклонениях ЭДДР от равновесия были выведены и экспериментально подтверждены следующие уравнения для релаксации электронной поляризации p_S и обратной температуры ЭДДР β_d, справедливые при $k_B T_S \ll \hbar\omega_S$:

$$\frac{dp_S}{dt} = -\frac{1}{T_{SL}} (p_S - p_{SL}) ,$$

$$\frac{d\beta_d}{dt} = -\frac{M_2^*}{(\omega_{SS}^*)^2} \frac{(1-p_S^2)(1-p_{SL}^2)}{1-p_S p_{SL}} \frac{1}{T_{SL}} (\beta_d - \beta_L) . \qquad (12)$$

По аналогии с (12), с учетом (11) можно записать уравнение для обратной температуры ДДР собственных ядер β_{II}:

$$\frac{d\beta_{II}}{dt} = -\frac{KM_{2I}^{*}}{T_{SL}(\omega_{II}^{\text{eff}})^2}\frac{(1-p_I^2)(1-p_{IL}^2)}{1-p_I p_{IL}}(\beta_{II}-\beta_L)\ , \tag{13}$$

где M_{2I}^{*} — второй момент спин-фононной корреляционной функции, где вместо операторов электронных спинов берутся операторы спинов собственных ядер (ср. с формулой (4) из [9]):

$$\varphi_{I\text{ph}}(t) = \frac{\langle I^{+}(t)I^{-}\rangle_I \exp(\hbar\omega_I/k_B T_L) + \langle I^{-}(t)I^{+}\rangle_I}{\langle I^{+}I^{-}\rangle_I \exp(\hbar\omega_I/k_B T_L) + \langle I^{-}I^{+}\rangle_I}\ ; \tag{14}$$

временная зависимость в (14) определяется взаимодействием H_{II}^{eff}. Сравнивая (13) с (11), можно заключить, что ДДР собственных ядер релаксирует медленнее, чем зеемановская подсистема. Тогда можно заменить в (13) $p_I \to p_{IL}$ и получить

$$\frac{d\beta_{II}}{dt} = -\frac{K}{T_{SL}}\frac{(M_{2I}^{*})_L}{(\omega_{II}^{\text{eff}})_L^2}(1-p_{IL}^2)(\beta_{II}-\beta_L)\ . \tag{15}$$

При сверхнизких температурах поляризация собственных ядер настолько высока, что можно применить асимптотику

$$(1-p_{II}^2) \approx 4\exp(-A_{\parallel}/2k_B T_L)\ .$$

Таким образом, окончательно для скорости релаксации далеких ядер через ДДР собственных ядер получаем

$$\left(\frac{1}{T_F}\right)_{\text{eff}} = \frac{4x^2/33}{1+x^2/33}\frac{K}{T_{SL}}\frac{(M_{2I}^{*\text{eff}})_L}{(\omega_{II}^{\text{eff}})_L^2}\exp(-A_{\parallel}/2k_B T_L). \tag{16}$$

Отметим, что, поскольку наши вычисления проведены для $I = S = 1/2$, в то время как в экспериментальной ситуации [8] $I = 7/2$, $S = 1$, нет возможности провести количественное сравнение с результатами [8]. Укажем, однако, что, несмотря на сильное «утяжеление» ДДР (формула (5) с данными из [8] предсказывает $(\omega_{II}^{\text{eff}})^2/\omega_{II}^2 \propto \propto 10^9 \exp(-A_{\parallel}/2k_B T_L)$), следует ожидать справедливости следующего неравенства:

$$x^2 \approx x^2|_{p_I=0}(1-p_I^2) \approx$$

$$\approx 4x^2|_{p_I=0}\exp(-A_{\parallel}/2k_B T_L) \ll 1\ ,$$

как и предполагалось в [8]. Эффективная скорость релаксации далеких ядер, выраженная через скорость релаксации собственных ядер с учетом (18) имеет вид, аналогичный выражению (41) из [8], однако учитывает также температурную зависимость x^2:

$$\left(\frac{1}{T_F}\right)_{\text{eff}} = \frac{16}{11}\frac{1}{T_{IL}}x^2\Big|_{p_I=0}\exp(-A_{\parallel}/k_B T_L)\ .$$

Экспоненциальная температурная зависимость с константой СТВ в показателе экспоненты согласуется с экспериментом [8].

Заключение

Таким образом, в данной работе для случая $S = I = 1/2$ в явном виде получен гамильтониан ДДР собственных ядер, «утяжеленного» вкладом от электронных диполь-дипольных взаимодействий, передаваемым собственным ядрам посредством СТВ. Вычислена теплоемкость «утяжеленного» ДДР собственных ядер. Исследована релаксация далеких ядер к решетке через этот ДДР. Показано, что оба тепловых контакта (далекие ядра — ДДР собственных ядер и ДДР собственных ядер — решетка) не замораживаются при сверхнизких температурах. Для типичной экспериментальной ситуации узкое горло имеет место на участке ДДР собственных ядер — решетка. Соответствующая скорость релаксации имеет экспоненциальную температурную зависимость с константой СТВ в показателе экспоненты, что согласуется с экспериментом.

1. Л. Л. Буишвили, *ЖЭТФ* **49**, 1868 (1965).
2. В. А. Ацаркин, М. И. Родак, *УФН* **107**, 3 (1972).
3. А. Абрагам, М. Гольдман, *Ядерный магнетизм: порядок и беспорядок*, Мир, Москва (1984).
4. В. А. Ацаркин, *Динамическая поляризация ядер в твердых диэлектриках*, Наука, Москва (1980).
5. J. S. Waugh and Ch. P. Slichter, *Phys. Rev.* **B37**, 4337 (1988).
6. Л. Л. Буишвили, Т. Л. Буишвили, Н. П. Фокина, *Письма в ЖЭТФ* **50**, 245 (1989).
7. Т. Л. Буишвили, Н. П. Фокина, *ФТТ* **31**, 173 (1989).
8. A. Abragam, G. L. Bacchella, H. Glattli, P. Meriel, J. Piesvayx, and M. Pinot, *Physica* **B81**, 245 (1976).
9. Т. Л. Буишвили, Н. П. Фокина, *ФТТ* **25**, 1761 (1983).
10. L. L. Buishvili, M. D. Zviadadze, and N. P. Fokina, *Physica* **B84**, 200 (1976).
11. Л. Л. Буишвили, Е. Б. Волжан, М. Г. Менабде, *ТМФ* **46**, 251 (1981).
12. Э. В. Авагян, *Усиленная магнитная восприимчивость и спиновая динамика твердых парамагнетиков при низких температурах*, Дисс. ... канд. физ.-мат. наук, Москва (1980).
13. В. А. Ацаркин, Г. А. Васнева, *ЖЭТФ* **80**, 2098 (1981).

Ultralow-temperature far nuclei relaxation via dipole-dipole reservoir of inherent nuclei of paramagnetic centers in solids

D. A. Kostarov and N. P. Fokina

A mechanism of far nuclei relaxation via the dipole-dipole reservoir (DDR) of the inherent nuclei of paramagnetic centres not «freezing» at very low temperature was suggested in one of the works by Abragam and his co-workers. It was shown that due to the mixing of electron and nuclear spin states caused by superfine interaction the flip-flop matrix elements of the inherent nuclei are in fact electron matrix elements. This is equivalent to the increase of heat capacity («enlargement») of DDR inherent nuclei. Such an «enlarged» DDR inherent nuclei plays further the role of thermodynamic subsystem via which the relaxation of far nuclei to the lattice takes place, the bottle-neck being at the second stage of relaxation. Since this mechanism may be dominant in the low temperature nuclear relaxation as well as in other experimental situations, it is of interest to derive the Hamiltonian of the «enlarged» DDR in the explicite form, to calculate its heat capacity and to evaluate the effective rate of far nuclei relaxation via DDR inherent nuclei. It is precisely these problems that have been solved in our work.