Физика низких температур, 1998, т. 24, № 1, с. 23–26

Ядерная магнитная релаксация второго рода в образцах с туннельными двухуровневыми системами

Л. Ж. Захаров[1], А. И. Тугуши[2], Л. Л. Чоторлишвили[2]

[1] *Институт физики АН Грузии, 380077, г. Тбилиси, ул. Гурамишвили, 6*

[2] *Тбилисский государственный университет, Грузия, 380028, г. Тбилиси, пр. Чавчавадзе, 3*
E-mail: root@imedil.postnet.ge

Статья поступила в редакцию 8 апреля 1997 г., после переработки 7 июня 1997 г.

Изучена ядерная магнитная релаксация второго рода, обусловленная электрическим квадрупольным взаимодействием между парамагнитными и двухуровневыми системами. Проведено сравнение времен релаксации первого и второго рода. Показано, что при относительно низких магнитных полях преобладает релаксация второго рода.

Вивчено ядерну магнітну релаксацію другого роду, обумовлену електричною квадрупольною взаємодією між парамагнітними центрами та дворівневими системами. Проведено порівняння часів релаксації першого та другого роду. Показано, що при відносно низьких магнітних полях переважає релаксація другого роду.

PACS: **74.72.–h**

В последнее время интенсивно изучаются физические свойства неупорядоченных систем, низкотемпературные ($T < 1$ К) свойства которых, как известно, определяются туннельными двухуровневыми системами (ДУС) [1]. Особенностью ДУС является то, что их плотность состояний слабо зависит от энергии. Одним из многих методов изучения физических свойств неупорядоченных тел является исследование ЯМР. В [2] изучалось влияние туннельных ДУС на ядерную магнитную релаксацию, обусловленную парамагнитными центрами (ПЦ) и называемую релаксацией первого рода. В этой работе модуляция магнитного поля на ядре происходит вследствие изменения расстояния между ядром и ПЦ. (Предполагается, что часть ядер образует ДУС и расстояние между ядром и ПЦ изменяется из-за туннелирования ядра между двумя положениями равновесия.)

Кроме релаксации первого рода, существует релаксация второго рода, которая заключается в том, что модуляция магнитного поля на ядре происходит из-за флуктуации электронных магнитных моментов без изменения расстояния между ядром и ПЦ. Для изучения релаксации второго рода в [3] был феноменологически предложен следующий гамильтониан взаимодействия между ПЦ и ДУС:

$$\hat{H}_{Sd} = \sum_{nm} B_{nm} \left(S_n^z d_m^z + \frac{1}{2} \left(S_n^+ d_m^- + S_n^- d_m^+ \right) \right),$$

где $S_n^{\pm}$, S_n^z — проекции спинов ПЦ; d_m^z, $d_m^{\pm}$ — проекции псевдоспинов ДУС; B_{nm} — феноменологическая константа взаимодействия.

В настоящей работе мы рассматриваем конкретный механизм релаксации второго рода. В частности, предполагаем, что ПЦ обладает спином $S > 1/2$ и, следовательно, имеет квадрупольный момент. Наличие ДУС приводит к тому, что туннелирование ядра между двумя положениями равновесия изменяет градиент электрического поля на ПЦ и тем самым вызывает флуктуации электронных магнитных моментов, которые вызывают ядерную релаксацию.

Найдем гамильтониан взаимодействия ПЦ и ДУС. Запишем гамильтониан квадрупольного взаимодействия ПЦ с градиентом электрического поля [4]

$$\hat{H}^Q = P_{\|}\left[\left\{(S^z)^2 - \frac{1}{3}\,S(S+1)\right\} + \frac{1}{3}\eta\left((S^+)^2 + (S^-)^2\right)\right],$$

$$P_{\|} = -\frac{3e^2Q\,\langle r_q^{-3}\rangle}{4S(2S-1)}\,\langle J \,\|\, \beta \,\|\, J\,\rangle\;\langle\,|\,3J^z - J(J+1)\,|\,\rangle,$$

$$\eta = \frac{3\,\langle\,(J^{\pm})^2\,\rangle}{\langle\,|\,3J^z - J(J+1)\,|\,\rangle},$$

S — спин ПЦ; J — спин ядра, образующий ДУС; r — расстояние между ПЦ и ядром.

Градиент электрического поля с учетом того, что ядро может находиться в несимметричной потенциальной яме, представим в виде

$$e\hat{Q} = \begin{pmatrix} eV_{zz}^1 & 0 \\ 0 & eV_{zz}^2 \end{pmatrix} = eV_{zz}^1\begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} + eV_{zz}^2\begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} =$$

$$= e\,\frac{V_{zz}^1 + V_{zz}^2}{2}\,\hat{I} + e\,\frac{V_{zz}^1 - V_{zz}^2}{2}\,\sigma^z, \qquad (1)$$

V_{zz}^1 и V_{zz}^2 — значения градиентов электрического поля, соответствующие двум различным состояниям ДУС; $\hat{I}$ — единичная матрица; σ^z — матрица Паули.

Второй член в (1) описывает изменение градиента электрического поля, вызванное прыжками ДУС между двумя положениями равновесия. Этот член по порядку величины равен

$$e(V_{zz}^1 - V_{zz}^2)d^z \sim \frac{d}{a}\,eV_{zz}d^z \sim 0{,}1eV_{zz}d^z,$$

где d — разница между минимумами ДУС; a — расстояние между ДУС и ПЦ.

С учетом вышесказанного гамильтониан взаимодействия ПЦ с туннельной ДУС будет иметь вид

$$\hat{H}_{Sd} = \sum_{kn} A_{kn} \times$$

$$\times\left[\left\{(S_k^z)^2 - \frac{1}{3}\,S_k(S_k+1)\right\} + \frac{1}{3}\,\eta\left((S_k^+)^2 + (S_k^-)^2\right)\right] d_n^z\,.$$

В собственном представлении ДУС, которое осуществляется посредством унитарного преобразования оператором

$$U = \exp\,(i\varphi d^y),$$

где $tg\,\varphi = \Delta_0/\Delta$; Δ_0 — туннельный параметр; Δ — асимметрия потенциальной ямы [1]; $\hat{H}_{Sd}$ принимает вид

$$\hat{H}_{Sd} = \sum_{kn} A_{kn}\left[\left\{(S_k^z)^2 - \frac{1}{3}\,S_k\,(S_k+1)\right\} + \frac{1}{3}\,\eta\left((S_k^+)^2 + (S_k^-)^2\right)\right]\left\{\frac{\sqrt{\varepsilon_n^2 - \Delta_{0n}^2}}{\varepsilon_n}\,d_n^z + \frac{1}{2}\,\frac{\Delta_{0n}}{\varepsilon_n}\,(d_n^+ + d_n^-)\right\}, \qquad (2)$$

ε_n — энергия ДУС.

Таким образом, в дальнейшем будем предполагать, что взаимодействие (2) обусловливает временную корреляцию спинов ПЦ.

Запишем полный гамильтониан системы:

$$\hat{H} = -\hbar\omega_I\sum_i I_i^z + \hbar\omega_S\sum_j S_j^z + \hat{H}^{IS} + \sum_n \varepsilon_n d_n^z + H_{Sd}\,,$$

где $\hbar\,\omega_I$ — зеемановская энергия ядра; I — спин ядра; $\hbar\omega_S$ — зеемановская энергия электрона; $\hat{H}^{IS}$ — гамильтониан диполь-дипольного взаимодействия между парамагнитным центром и ядром.

Выражение для времени ядерной магнитной релаксации находим, используя формулу Кубо [5]. Как известно, величина времени релаксации определяется корреляционной функцией парамагнитной примеси, которая, в свою очередь, обусловлена взаимодействием $\hat{H}_{Sd}$, т.е.

$$\langle\,S_j^zS_j^z(t)\,\rangle = \langle\,S_j^z e^{i\hat{H}_{Sd}t}\,S_j^z\,e^{-i\hat{H}_{Sd}t}\,\rangle.$$

Пользуясь теорией возмущений (рассматривая $\hat{H}_{Sd}$ в качестве возмущения), можно показать, что вклад в корреляционную функцию дают только четные члены разложения, поэтому корреляционная функция может быть аппроксимирована гауссовой кривой. Следовательно, можно записать

$$\langle\,S_j^zS_j^z(t)\,\rangle = \langle\,S_j^zS_j^z\,\rangle\,e^{-(\alpha+\gamma)t^2}, \qquad (3)$$

где

$$\alpha = \frac{\eta^2}{9}\sum_{jn} |A_{jn}|^2 \frac{\varepsilon_n^2 - \Delta_{0n}^2}{\varepsilon_n^2} \langle d_n^z d_n^z \rangle \left(\langle S_j^+ S_j^- \rangle + \langle S_j^- S_j^+ \rangle - 1 \right) \tag{4}$$

и

$$\gamma = \frac{\eta^2}{9} \sum_{jn} | A_{jn} |^2 \frac{1}{4} \frac{\Delta_{0n}^2}{\varepsilon_n^2} \times$$

$$\times \left(\langle d_n^+ d_n^- \rangle + \langle d_n^- d_n^+ \rangle \right) \left(\langle S_j^+ S_j^- \rangle + \langle S_j^- S_j^+ \rangle - 1 \right).$$

В выражении (4) заменяем d_n^z соответствующей флуктуацией и переходим от суммирования по n и j к интегрированию по параметрам ДУС. После несложных вычислений получаем

$$\alpha = \frac{\eta^2}{18} \left(\ln \frac{\varepsilon_{\max}}{e\Delta_{0m}} \right) \overline{P}\, C\, \overline{A^2} \left(\langle S^+ S^- \rangle + \langle S^- S^+ \rangle - 1 \right) T,$$

$$\gamma = \frac{\eta^2}{36} \overline{A^2}\, \varepsilon_{\max} \overline{P}\, C,$$

где $\overline{P}$ — плотность состояний ДУС; $\overline{P} \sim N_D/\varepsilon_{\max}$, $C = N_{PC}/N$, где N_D и N_{PC} — соответственно концентрации ДУС и ПЦ; $\overline{A}$ — среднее значение константы A_{jn}; $A_{jn} \sim (d/a)P_\parallel$; $\varepsilon_{\max}$ — максимальное значение энергии ДУС; Δ_{0m} — минимальное значение энергии туннелирования. Подставляя (3) в выражение для времени релаксации, окончательно имеем

$$\frac{1}{T_1} = 4 \frac{N_{PC}}{N} \frac{\sqrt{\pi}}{\hbar^2 \sqrt{\alpha + \gamma}}\, e^{-\omega_I^2/[4(\alpha+\gamma)]} \langle (S^z)^2 \rangle\, \overline{U^2},$$

$\overline{U}$ — среднее значение взаимодействия между ядром и ПЦ.

Легко видеть, что так как $\varepsilon_{\max} >> T$, то $\gamma >> \alpha$, поэтому

$$\frac{1}{T_1} \sim 4c \frac{\sqrt{\pi}}{\hbar^2 \sqrt{\gamma}}\, e^{-\omega_I^2/4\gamma} \langle (S^z)^2 \rangle\, \overline{U^2}.$$

Сравним полученное выражение для скорости ядерной релаксации второго рода со скоростью релаксации первого рода из работы [2]. В [2] в выражении для скорости релаксации имеются два члена, один — пропорциональный температуре, другой постоянный; при

$$T > \frac{\hbar}{k_B} \frac{(1 + \tau^2 \omega_I^2)}{\tau}$$

(τ — время корреляции псевдоспиновой корреляционной функции $\langle d^z d^z(t) \rangle$, которая при больших концентрациях ДУС определяется взаимодействием между ДУС и при концентрациях ДУС $N_D = 10^{27}$ м$^{-3}$ достигает значения $\tau \sim 10^{-9}$ с [6]), преобладающим будет пропорциональный температуре член, который доминирует при $T > 10^{-2}$ К, если положить $\omega_I \tau < 1$. Ограничиваясь температурами $T > 10^{-2}$ К, будем иметь

$$\frac{1}{T_1} : \frac{1}{T_1'} \sim \frac{4C}{\hbar^2} \sqrt{\pi/\gamma}\; \overline{U^2} \langle (S^z)^2 \rangle\, e^{-\omega_I^2/4\gamma} : \frac{9d^2}{a^2}\, z\, \frac{\overline{U^2}}{\hbar^2}\, C\, \frac{n(\varepsilon)}{N_I} \frac{1}{8} \ln \frac{\varepsilon_{\max}}{e\Delta_0} \frac{\tau}{1 + \omega_I^2 \tau^2} k_B T, \tag{5}$$

$n(\varepsilon) = N_D \overline{P}$; z — число ближайших соседей ПЦ; $d \sim 0{,}1\, a$.

Из (5) получим

$$\frac{1}{T_1} : \frac{1}{T_1'} \sim \sqrt{\pi/\gamma}\, e^{-\omega_I^2/2\gamma} : z\overline{P} \frac{N_D}{N} \tau k_B T = \frac{\sqrt{\pi/\gamma}\, e^{-\omega_I^2/2\gamma}}{z\overline{P}\, (N_D/N_I)\, \tau k_B T}.$$

При $N_D/N_I \sim 10^{-3}$, N_I — концентрация псевдоспинов; $\tau \sim 10^{-9}$ с; $\overline{P} \sim 10^{19}$ Дж; $z \sim 10$ [1] имеем

$$\frac{1}{T_1} : \frac{1}{T_1'} \sim \frac{10^{15}\, e^{-\omega_I^2/2\gamma}}{\sqrt{\gamma} T}. \tag{6}$$

Из (6) видно, что при

$$T < \frac{10^{15} e^{-\omega_I^2/2\gamma}}{\sqrt{\gamma}}$$

скорость релаксации второго рода $1/T_1$ больше, чем скорость релаксации первого рода $1/T_1'$.

Оценим T для ядер U. Подстановка стандартного значения $\gamma \sim 2{,}5 \cdot 10^{10}$ Гц для зеемановской частоты $\omega_I \sim 10^6$ Гц дает $T < 1$ К.

Авторы отмечают полезное участие Л. Л. Буишвили в обсуждении полученных результатов.

Эта работа стала возможной во многом благодаря гранту 2.12 Академии наук Грузии.

1. В. П. Смоляков, Е. П. Хаимович, *УФН* 136, N 2 (1982).
2. L. L. Buishvili, L. Zh. Zakharov, A. L. Tugushi, and N. P. Fokina, *Physica* **B168**, 205 (1991).
3. Р. Л. Лепсверидзе, Дисс. ... канд. физ.-мат. наук, Тбилисский государственный университет (1995).
4. А. Абрагам, *Ядерный магнетизм*, Изд-во иностр. лит., Москва (1963).
5. И. В. Александров, *Теория магнитной релаксации*, Наука, Москва (1975).
6. S. J. Szeftel and H. J. Alloul, *Non-Cryst. Solids* **29**, 253 (1978).

Nuclear magnetic second order relaxation in samples with tunnel two-level systems

L. Zh. Zakharov, A. I. Tugushi,
and L. L. Chotorlishvili

The nuclear magnetic second-order relaxation due to the electric quadrupole interaction between paramagnetic centers (PC) and tunnel two-level systems is studied. The times of the first-order and the second-order relaxations are compared. It is shown that in relatively low magnetic fields the second-order relaxation predominates.