

О ВЛИЯНИИ ТУННЕЛИРОВАНИЯ НА ЭФФЕКТИВНЫЙ МАГНИТНЫЙ МОМЕНТ ПРИМЕСНЫХ $[AlO_4]^0$ -ЦЕНТРОВ В КВАРЦЕ

А.Б.Брик, И.В.Матяш, Н.Б.Садуев

Для алюминиевых центров в кварце ранее был обнаружен ряд аномальных эффектов, связанных с туннельным движением парамагнитной дырки по различным структурным позициям. В работах [1,2] для этих центров при $T = 4.2$ К обнаружено гигантское увеличение статической намагниченности переменным электрическим полем, а в работе [3] при $T = 30$ К обнаружена аномальная температурная зависимость намагниченности на частоте резонансных ЭПР-переходов. В настоящей работе приведены новые экспериментальные данные о температурной зависимости магнитных характеристик $[AlO_4]^0$ -центров, а также качественные обсуждения возможных механизмов обнаруженных эффектов.

Эксперименты выполнены на управляемом компьютере ЭПР-спектрометре трехсантиметрового диапазона ПС-100 Х. Исследованы порошкообразные образцы кварца с $[AlO_4]^0$ -центрами, концентрация центров $N \approx 10^{18}$ см². Исследовалась зависимость интегральной интенсивности сигналов ЭПР, а также их ширины от температуры кристалла. Результаты эксперимента представлены на рис. 1, 2.

Как видно из рис. 1, в диапазоне температур 90–120 К уменьшение интенсивности сигналов ЭПР незначительно (оно определяется уменьшением разности населенностей зеemanовских уровней в соответствии с статистикой Больцмана). При $T > 120$ К имеет место резкое уменьшение интегральной интенсивности сигналов до их полной ненаблюдаемости. При этом форма сигнала ЭПР трансформируется следующим образом. При $T < 100$ К регистрируется обычный для порошкообразных образцов спектр центров с аксиальным g -тензором порошкообразных образцов (см., например, [4]). При $T > 120$ К компонента спектра, соответствующая g_{\perp} , уширяется (рис. 2), так что в конечном счете спектр принимает вид почти симметричной одиночной линии, ширина которой при $T > 140$ К практически не зависит от температуры. Многочисленные попытки зафиксировать сигналы ЭПР $[AlO_4]^0$ -центров при более высоких температурах не увенчались успехом.

Структура и ЭПР-характеристики $[AlO_4]^0$ -центров в кварце подробно рассматривались во многих работах (см., например, [3,5,6]). Здесь отметим лишь то, что с этими центрами, кроме магнитного μ , связан также электрический d дипольный момент, а парамагнитная дырка этого центра благодаря туннелированию может быть как локализованной на одном из ионов кислорода примесного $[AlO_4]^0$ -тетраэдра, так и делокализованной по различным ионам кислорода в этом тетраэдре.

В работе [3] с учетом взаимодействий dE и μH (здесь E и H — напряженности электрического и магнитного полей), а также туннелирования найдены выражения для энергии квантовых состояний центра \mathcal{E}_i и вероятностей резонансных ЭПР-переходов между разными состояниями.

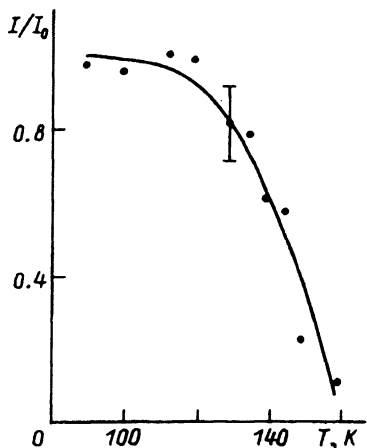


Рис. 1. Зависимость интегральной интенсивности сигналов ЭПР от температуры кристалла
 I_0 — интенсивность сигнала при $T = 90$ К.

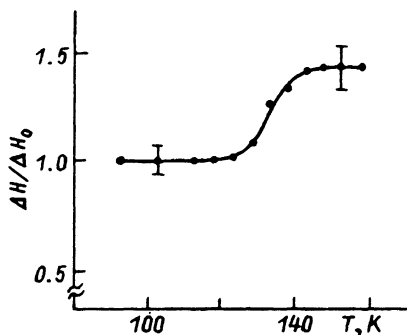


Рис. 2. Зависимость ширины сигнала ЭПР от температуры.
 Исходная ширина $\Delta H_0 \approx 12$ Гс.

Определим магнитный момент квантового состояния μ_j выражением $\mu_j = \partial \mathcal{E}_j / \partial H$. В случае, если волновые функции исходных локализованных состояний φ_1 и φ_2 соответствуют состояниям с различной проекцией спина на магнитное поле, то для магнитного момента делокализованного состояния ψ_j , исходя из [3], можно получить

$$\mu_j \approx \mu_i^{(0)} (1 + \gamma^2)^{-1/2}, \quad (1)$$

где $\mu_j^{(0)}$ — магнитный момент исходных локализованных состояний; параметр γ определяет соотношение вклада функции φ_1 и φ_2 в волновую функцию туннельных состояний ψ_j .

В простейшем случае параметр γ можно определить как [3]

$$\gamma = \Gamma / \Delta_0.$$

где Γ — величина туннельного расщепления; Δ_0 — величина зазора между локализованными состояниями, описываемыми функциями φ_1 и φ_2 в отсутствие туннелирования. При $\gamma = 0$ центр локализован, а при $|\gamma| \gg 1$ делокализован [3].

Из (1) видно, что в рассматриваемом случае при $|\gamma| \gg 1$ $\mu_j \rightarrow 0$, т.е. делокализация центра ведет к уменьшению эффективного магнитного момента. При этом, в частности, происходит [3] уменьшение вероятностей индуцированных переходов, определяющих интенсивности сигналов ЭПР. Проведенный выше анализ может быть использован для качественного объяснения описанных в данной статье экспериментов.

Будем считать, что при $T < 110$ К основная масса $[\text{AlO}_4]^{0-}$ -центров локализована в одной из структурных позиций, а при $T > 120$ К происходит их делокализация по различным позициям. Это может происходить либо за счет того, что становятся все более населенными возбужденные колебательные состояния, для которых Γ велико, либо за счет локального

фазового перехода для $[\text{AlO}_4]^{0-}$ -центров, при котором происходит существенное увеличение Γ . Поскольку для исследованных нами образцов $\Delta_0 \approx 10^9 \div 10^{11}$ Гц [3,7], то величина Γ должна быть больше или порядка этих величин. При этом делокализация центра за счет смешивания локализованных состояний с разной проекцией спина на магнитное поле может приводить к уменьшению эффективного магнитного момента центра и соответственно к уменьшению вероятности индуцированных переходов и интенсивности сигнала ЭПР.

Поскольку разные $[\text{AlO}_4]^{0-}$ -центры находятся в неодинаковых внутренних электрических полях E_i , созданных дефектами кристаллической решетки [7], то для разных центров делокализация, очевидно, происходит при несколько разных температурах. Таким образом, удается понять и объяснить представленные на рис. 1, 2 зависимости. Отсутствие зависимости ширины сигнала ЭПР от температуры при $T > 140$ К подтверждает, что мы, очевидно, имеем дело не с традиционными механизмами, приводящими к изменению ширины за счет движения, а с туннельным движением, при котором за счет смешиваний состояний с разной проекцией спина на магнитное поле происходит «размагничивание» квантовых состояний.

Работа выполнена в рамках проекта, финансируемого ГКНТ Украины.

Список литературы

- [1] Брик А.Б., Матяш И.В., Такзей Г.А., Костышин А.М. // ФТТ. 1986. Т. 28. № 4. С. 962–965.
- [2] Брик А.Б., Матяш И.В., Безобчук В.К., Лариков А.А. // Письма в ЖЭТФ. 1989. Т. 50. № 5. С. 247–249.
- [3] Ройцин А.Б., Брик А.Б., Гохман В.Л. // ЖЭТФ. 1988. Т. 94. № 5. С. 194–203.
- [4] Пул Ч. Техника ЭПР-спектроскопии. М.: Мир, 1970. 556 с.
- [5] Nuttal R.N.D., Weil J.A. // Can. J. Phys. 1981. V. 59. N 11. P. 1696–1708.
- [6] Schnald R., Schneider J. // Phys. Kondens. Material. 1970. V. 11. P. 19–42.
- [7] Брик А.Б. // ФТТ. 1982. Т. 24. № 6. С. 1594–1597.

Институт геохимии и физики минералов
АН Украины
Киев

Поступило в Редакцию
29 декабря 1992 г.
В окончательной редакции
14 мая 1993 г.