

ИМПУЛЬСНОЕ НАСЫЩЕНИЕ НЕОДНОРОДНО УШИРЕННЫХ СПИНОВЫХ СИСТЕМ

© В.С.Кузьмин

Институт физики твердого тела и полупроводников
Академии наук Белоруссии,
220072 Минск, Белоруссия
(Поступила в Редакцию 18 июля 1995 г.
В окончательной редакции 19 февраля 1996 г.)

Исследован характер импульсного насыщения в случае неоднородного уширения.

Недавно в [1] экспериментально показано, что с уменьшением концентрации ионов хрома в рубине в сигнале импульсного насыщения (ИН) ЭПР на второй гармонике наблюдается двухэкспоненциальный спад, что находится в противоречии с блоховской теорией. Такая же ситуация наблюдалась и в дифенилпикрилгидразиле при гелиевых температурах [2]. Теоретический анализ, проведенный в [1], является неполным, поскольку авторам не удалось получить окончательного аналитического выражения для отклика с учетом неоднородного уширения линии. Отсутствие аналитического выражения для ИН в неоднородно уширенных спиновых системах оставляет открытым вопрос о том, в каких же условиях блоховское описание ИН является корректным и полным. Выяснению этого и посвящена настоящая работа.

Пусть длительность электромагнитного импульса t мала по сравнению с временем спин-решеточной релаксации T_1 , но больше времени спин-спиновой релаксации T_2 . Тогда при $T_2 \ll T_1$ и $\omega_1 T_2 < 1$ (ω_1 — частота Раби) выражение для v -компоненты ИН на второй гармонике будет иметь вид [3]

$$v(t) = \frac{v_0 \tilde{\omega}_1 T_2}{(1 + \Delta^2 T_2^2)(1 + \Delta^2 T_2^2 + \tilde{S})} \left[1 + \Delta^2 T_2^2 + \tilde{S} \exp \left(-\frac{t}{T_1} \left(1 + \frac{\tilde{S}}{1 + \Delta^2 T_2^2} \right) \right) \right], \quad (1)$$

где Δ — разброс частот спиновых пакетов, $\tilde{S} = \tilde{\omega}_1^2 T_1 T_2$ — параметр насыщения, $\tilde{\omega}_1 = \omega_1 J_1(2\omega_1/\omega_0)$, ω_0 — резонансная частота перехода, $J_1(z)$ — функция Бесселя первого порядка [4].

Выражение (1) справедливо для однородно уширенной линии, и в резонансе спад ИН происходит по экспоненциальному закону с временем затухания $T_1/(1 + \tilde{S})$. Для неоднородно уширенной линии (1) не-

обходимо усреднить по ее контуре $g(\Delta T_2)$. Тогда для $\langle \delta v(t) \rangle = \int (v(t) - v(\infty))g(\Delta T_2)d\Delta T_2$ получим

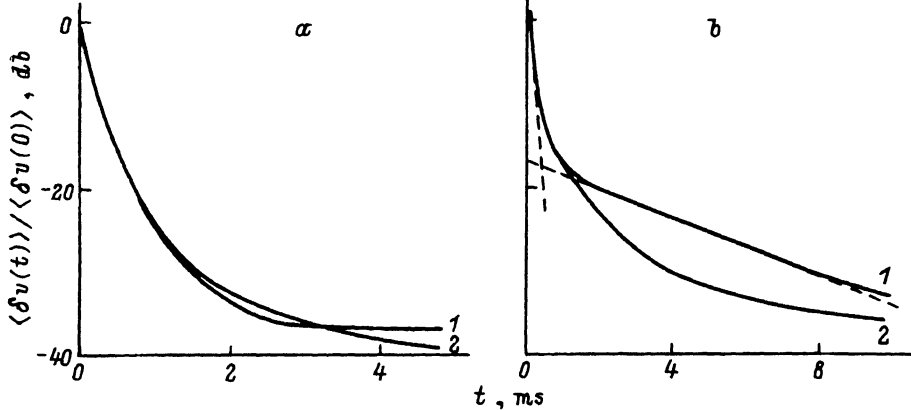
$$\langle \delta v(t) \rangle = v_0 \omega_1 \sigma T_2^2 \left\{ \frac{I_0(x)}{\alpha \alpha'} + \frac{[I_0(x) + 2 \sum_{n=1}^{\infty} (\gamma'/\gamma)^n I_n(x)]}{\sqrt{1 + \tilde{S}}(\tilde{S} - \alpha \alpha')} - \frac{[I_0(x) + 2 \sum_{n=1}^{\infty} (|\alpha'|/\alpha)^n I_n(x)] \tilde{S}}{\sigma T_2 \alpha \alpha' (\tilde{S} - \alpha \alpha')} \right\} \exp\left(-\frac{t}{T_1} - x\right), \quad \gamma, \gamma' = \sqrt{1 + \tilde{S}} \pm 1, \quad (2)$$

где $\alpha, \alpha' = \sigma T_2 \pm 1$, $x = t\tilde{S}/2T_1$, σT_2 — полуширина лоренциана, $I_n(x)$ — модифицированная функция Бесселя. Для определения временной характеристики спада ИН вычислим интегральное время затухания T_i [5]

$$T_i = \frac{\langle \delta v(0) \rangle}{\int_0^{\infty} \langle \delta v(t) \rangle dt} = T_1 \frac{\tilde{S}(1 + \sigma T_2)(2\sqrt{1 + \tilde{S}} + \sigma T_2)}{2(1 + \tilde{S})(\sigma T_2 + \sqrt{1 + \tilde{S}})(\tilde{S} + \sigma T_2(\sqrt{1 + \tilde{S}} - 1))}. \quad (3)$$

При малых σT_2 и конечном \tilde{S} $T_i \approx T_1/(1 + \tilde{S})$, что совпадает с предыдущей оценкой времени затухания для однородно уширенной линии. Анализ подынтегрального выражения в $\langle \delta v(t) \rangle$ показывает, что оно обнаруживает экстремальное поведение: при $t < T_1/B_k^2 \tilde{S} = t_{0k}$ ($B_1 = 1$, $B_2 = (1 + \tilde{S})^{1/2}$, $B_3 = \sigma T_2$) в точке $\Delta T_2 = 0$ имеется одиночный максимум, который при $t > t_{0k}$ превращается в минимум, и одновременно с этим появляются два боковых максимума при $\Delta T_2 = \pm \{x - 1 + [(x + B_k^2 - 1)^2 - (B_k^2 - 1)^2]^{1/2}\}^{1/2}$. Оценка интегралов с помощью метода Лапласа показывает, что при $t < t_{0k}$ спад сигнала происходит по экспоненциальному закону с временем затухания $T_1/(1 + \tilde{S})$, а при $t > t_{0k}$ — по сложному неэкспоненциальному закону. Следовательно, при длительностях импульса, когда линия колоколообразна, можно говорить о насыщении однородно уширенной линии, а при $t > t_{0k}$, когда возникает провал, линия ведет себя при насыщении как неоднородно уширенная.

Применим теперь вышеприведенные оценки для описания эксперимента по ИН в рубине [1], в котором установлено, что вид кривой временного спада ИН зависит от параметра $(\sigma T_2)^{-1}$, имеющего смысл относительной ширины спинового пакета. При большой концентрации хрома (образец № 1, 0.16% вес. Cr^{3+} , $(\sigma T_2)^{-1} = 0.25$) ИН вначале спадает по экспоненциальному закону, а затем его затухание становится неэкспоненциальным (см. рисунок, а). При небольшой концентрации хрома (образец № 2, 0.01% вес. Cr^{3+} , $(\sigma T_2)^{-1} = 0.025$) временная зависимость ИН носит двухэкспоненциальный вид (см. рисунок, б). Анализ сигнала ИН и его времени затухания показывает, что экспериментально наблюдаемый спад сигнала и его времени затухания для



Временная зависимость сигнала импульсного насыщения в образцах № 1 (а) и 2 (б) рубина.

1 — эксперимент [1], 2 — теория.

образца № 1 достаточно хорошо описывается формулами (2) и (3) соответственно (см. рисунок, а), в то время как для образца № 2 такого соответствия нет (см. рисунок, б).

По этому поводу можно высказать следующие соображения. Для образца № 2 условия для возникновения провала в контуре линии более благоприятны по сравнению с образцом № 1 из-за малости относительной ширины спинового пакета. В этой ситуации на фоне блоховской эволюции сигнала разыгрывается процесс переноса возбуждения от насыщенных спиновых пакетов к ненасыщенным (спектральная диффузия), который в рубине обеспечивается кроссрелаксацией Cr^{3+} через ядерную подсистему ^{27}Al ($I = 5/2$) ближайшего окружения атома хрома [6]. Как установлено в [7], характерное время этого процесса не может быть меньше времени дефазировки ядер ^{27}Al . Согласно этому же эксперименту, время дефазировки ядер ^{27}Al при низких концентрациях Cr^{3+} равно ~ 2 ms, в то время как в [1] время затухания второго экспоненциального спада сигнала ИН равно ~ 3 ms (см. рисунок, б). Поскольку время T_1 образца № 2 в 3 раза превышает T_1 образца № 1, то при одной и той же амплитуде возбуждающего поля эффективное время релаксации образца № 2 превышает время спектральной диффузии, тогда как для образца № 1 это условие не выполняется, т.е. релаксация возбужденных пакетов в решетку происходит быстрее, чем спектральное распространение возбуждения. По этой причине в образце с повышенной концентрацией Cr^{3+} линия при насыщении вначале ведет себя как однородно уширенная, а затем обнаруживает неэкспоненциальное затухание, характерное для суперпозиции сигналов ИН отдельных спиновых пакетов неоднородно уширенной линии.

Таким образом, на примере рубина теоретически показано, что уравнения Блоха удовлетворительно описывают динамику ИН неоднородно уширенной линии ЭПР до тех пор, пока эффективное время релаксации насыщенных спиновых пакетов в решетку меньше времени распространения возбуждения от насыщенных спиновых пакетов к ненасыщенным.

Список литературы

- [1] R. Boscaino, F.M. Gelardi. *J. Phys. C: Solid Stat. Phys.* **13**, 3737 (1980).
- [2] R. Boscaino, F.M. Gelardi, R.N. Mangerna. *J. Magn. Res.* **70**, 2, 262 (1986).
- [3] Н.В. Карлов. Лекции по квантовой электронике. Наука. М. (1988). С. 335.
- [4] В.С. Кузьмин, А.Н. Яшин. *Опт. и спектр.* **62**, 8, 1312 (1987).
- [5] А.И. Бурштейн, А.А. Жариков, В.С. Малиновский. *ЖЭТФ* **96**, 6, 2061 (1989).
- [6] R.L. Kuhl, B.D. Nageswara-Rao. *Phys. Rev.* **158**, 2, 284 (1967).
- [7] A. Szabo, T. Muramoto, R. Kaarli. *Phys. Rev.* **B 42**, 13, 7769 (1990).