УДК 538.95—405 : 539.12.04; 548 : 539.12.04

ВЛИЯНИЕ ЛАЗЕРНОГО ОБЛУЧЕНИЯ НА СПИН-РЕШЕТОЧНУЮ РЕЛАКСАЦИЮ В ЩЕЛОЧНО-ГАЛОИДНЫХ КРИСТАЛЛАХ С ТЯЖЕЛЫМИ ПРИМЕСЯМИ

Л. Л. Буишвили, И. И. Топчян

Методом неравновесного статистического оператора (НСО) Зубарева [1] исследована спин-решеточная релаксация в находящихся под лазерным облучением щелочно-галоидных кристаллах (ЩГК) с тяжелыми примесями. Получено кинетическое уравнение для обратной температуры спиновой подсистемы, а также выражение для времени спин-решеточной релаксации как при высоких, так и при низких температурах. Показано, что в стационарном состоянии система, состоящая из спиновой подсистемы и подсистем локальных и кристаллических фононов, находится в неэргодическом состоянии, причем температура спиновой подсистемы ниже температуры подсистемы кристаллических фононов.

Разогрев локальных колебаний примесей в результате резонансного взаимодействия электромагнитного лазерного излучения с электронной подсистемой ЩГК [2] приводит к нарушению теплового равновесия в фононной системе кристалла. В [3, 4] рассматривались терморелаксационные процессы, индуцированные лазерным излучением в ЩГК с тяжелыми и легкими примесями. С другой стороны, неравновесные процессы в фононной системе оказывают влияние на спин-решеточную релаксацию, обусловленную перераспределением энергии между разогретой подсистемой локальных колебаний и спиновой подсистемой, а также подсистемой кристаллических фононов. В случае примесей со спином $I > 1/2$ обмен энергией между спиновой и фононной подсистемами осуществляется в результате квадрупольного электрического взаимодействия [5]. Гамильтониан квадрупольного взаимодействия H_Q в динамической решетке можно представить в виде

$$H_Q = H_Q^{(0)} + H_Q^{(1)} + H_Q^{(2)} + H_Q^{(3)} + \ldots, \tag{1}$$

где $H_Q^{(0)}$ — взаимодействие квадрупольного момента ядра Q с внутрикристаллическим электрическим полем в статической решетке, которое в кристаллах с кубической симметрией равно нулю; $H_Q^{(i)}$ $(i=1, 2, \ldots)$ — вклад, обусловленный колебаниями атомов

$$H_Q^{(1)} = \sum_{n, \alpha} C_n^\alpha v_n^\alpha, \tag{2}$$

$$H_Q^{(2)} = \sum_{\substack{n, n' \\ \alpha, \beta}} C_{nn'}^{\alpha\beta} v_n^\alpha v_{n'}^\beta, \tag{3}$$

$$H_Q^{(3)} = \sum_{\substack{n, n', n'' \\ \alpha, \beta, \gamma}} C_{nn'n''}^{\alpha\beta\gamma} v_n^\alpha v_{n'}^\beta v_{n''}^\gamma, \tag{4}$$

где $v_n^\alpha = u_n^\alpha - u_0^\alpha$ — α-компонента смещения n-го иона относительно примеси, расположенной в начале координат,

$$C_n^\alpha = \frac{1}{6}\sum_{\mu,\,n} Q_{\mu\nu}\left.\frac{\partial V_{\mu\nu}}{\partial x_n^\alpha}\right|_0, \quad \tilde{C}_{nn'}^{\alpha\beta} = \frac{1}{12}\sum_{\mu,\,\nu} Q_{\mu\nu}\left.\frac{\partial^2 V_{\mu\nu}}{\partial x_n^\alpha \partial x_{n'}^\beta}\right|_0,$$

$$C_{nn'n''}^{\alpha\beta\gamma} = \frac{1}{36}\sum_{\mu,\,\nu} Q_{\mu\nu}\left.\frac{\partial^3 V_{\mu\nu}}{\partial x_n^\alpha \partial x_{n'}^\beta \partial x_{n''}^\gamma}\right|_0,$$

$$V_{\mu\nu} = \left.\frac{\partial^2 V}{\partial x_\mu \partial x_\nu}\right|_0,$$

V — потенциал электрического поля, $Q_{\mu\nu}$ — тензор квадрупольного момента.

Предполагая, что в кристалле с разогретой подсистемой локальных фононов число последних на малых расстояниях от примесного центра, на котором эффективно квадрупольное взаимодействие, значительно превышает число кристаллических фононов и учитывая отсутствие дисперсии локальных фононов для данного типа примеси, в первом приближении достаточно рассмотреть только релаксационные процессы с участием одновременно и локальных, и кристаллических фононов. В случае тяжелых примесей, локальные колебания которых являются щелевыми, это — трехфононные процессы, описываемые гамильтонианом $H_Q^{(3)}$. Действительно, согласно закону сохранения энергии,

$$\omega_л = \omega_{\mathbf{q}j} + \omega_{\mathbf{q}'j'} + \omega, \tag{5}$$

где $\omega_л$ — частота локальных колебаний, $\omega_{\mathbf{q}j}$ — частота j-й ветви акустических колебаний с волновым вектором $\mathbf{q}$; ω — зеемановская частота спиновых переходов (в (5), как и во всех последующих расчетах, предполагается $\hbar=1$). Как видно из (5), в случае двухфононных процессов разность частот локального и кристаллического колебаний равна частоте ω спиновых переходов, которая на несколько порядков меньше частоты колебаний атомов, т. е. $\omega_л \simeq \omega_{\mathbf{q}j}$. Такие колебания следует рассматривать как квазилокальные [6]. Однако взаимодействие лазерного излучения с электронной подсистемой примесного кристалла, в спектре которого имеются квазилокальные колебания, не приводит к преимущественному разогреву последних из-за отсутствия эффекта «узкого горла» [2] в канале обмена энергий между подсистемами квазилокальных и кристаллических колебаний и всей фононной системе кристалла можно приписать одну и ту же температуру T. Релаксационные процессы в такой системе исследованы в работе [6].

Используя выражение для амплитуды локальных колебаний тяжелой изотопической примеси [7] и учитывая, что

$$\zeta_{\substack{nn'n''\\ \alpha\beta\gamma}}^{\mu\nu} \equiv \partial^3 V_{\mu\nu}/\partial x_n^\alpha \partial x_{n'}^\beta \partial x_{n''}^\gamma|_0$$

быстро спадает с ростом расстояния от примеси, можно аналогично [8] выражение для квадрупольного взаимодействия в представлении вторичного квантования представить в виде

$$H_Q^{(3)} = R\sum_{m=-2}^{2} H^m, \tag{6}$$

где $R = eQ/24I\,(2I-1)$; e, I — заряд электрона и спин ядра примеси,

$$H^m = H_I^m H_P^{-m}, \quad H_I^{\pm1} = I^\pm I_z + I_z I^\pm, \quad H_I^{\pm2} = (I^\pm)^2, \quad H_I^0 = 3I_z^2 - I^2, \quad I^\pm = I_x \pm iI_y,$$

$I_{x,\,y,\,z}$ — компоненты спина вдоль соответствующих осей (предполагается, что ось z направлена вдоль постоянного магнитного поля $\mathbf{H}_0$),

$$H_P^m = \sum_{\mathbf{q}j,\,\mathbf{q}'j',\,\gamma} B_m\begin{pmatrix}\mathbf{q}j\\ \mathbf{q}'j'\\ \gamma\end{pmatrix}\left(b_{-\mathbf{q}j}^+ b_{-\mathbf{q}'j'}^+ a_\gamma + b_{\mathbf{q}j} b_{\mathbf{q}'j'} a_\gamma^+\right)\left(\omega_{\mathbf{q}j}\omega_{\mathbf{q}'j'}\right)^{1/2}\omega_\gamma^{-1/2},$$

$$B_{\pm1}\begin{pmatrix}\mathbf{q}j\\ \mathbf{q}'j'\\ \gamma\end{pmatrix} = -2\sum_{\substack{n,\,n',\,n''\\ \alpha,\,\beta;\,k,\,k'}}\left(\zeta_{\substack{nn'n''\\ \alpha\beta\gamma}}^{zy} \pm i\zeta_{\substack{nn'n''\\ \alpha\beta\gamma}}^{zx}\right)\varphi_{nn'n''}^{\alpha\beta,\,kk'}, \quad B_{\pm2}\begin{pmatrix}\mathbf{q}j\\ \mathbf{q}'j'\\ \gamma\end{pmatrix} =$$

$$= - \sum_{\substack{n,\, n',\, n'' \\ \alpha,\, \beta;\, k,\, k'}} \left(\zeta^{xx}_{\substack{nn'n'' \\ \alpha\beta\gamma}} - \zeta^{yy}_{\substack{nn'n'' \\ \alpha\beta\gamma}} \pm 2i \zeta^{xy}_{\substack{nn'n'' \\ \alpha\beta\gamma}} \right) \varphi^{\alpha\beta,\, kk'}_{nn'n''}, \qquad B_0 \begin{pmatrix} \mathbf{q} j \\ \mathbf{q}' j' \\ \gamma \end{pmatrix} = -2 \sum_{\substack{n,\, n',\, n'' \\ \alpha,\, \beta;\, k,\, k'}} \zeta^{zz}_{\substack{nn'n'' \\ \alpha\beta\gamma}} \varphi^{\alpha\beta,\, kk'}_{nn'n''},$$

$$\varphi^{\alpha\beta,\, kk'}_{nn'n''} = W^{\alpha}_{n,\, k} (\mathbf{q} j)\, W^{\beta}_{n'k'} (\mathbf{q}' j')\, g_{n''} v^{kk'}_{jj'}, \qquad W^{\alpha}_{n,\, k} (\mathbf{q} j) = (2NM)^{-1/2}\, r^k_n p_\alpha (\mathbf{q} j),$$

$$g_n = (2m)^{-1/2} \left[\frac{A}{r_n} - 1 - \delta A \right], \qquad A = \frac{\Delta m}{m} \frac{V_0}{4\pi l^2} \frac{\omega^2_{л}}{\omega^2_1 - \omega^2_{л}}, \qquad \Delta m = m - M, \qquad \delta = 1/l,$$

$$v^{kk'}_{jj'} \equiv v^k_j v^{k'}_{j'},$$

где l — длина убывания амплитуды локальных колебаний; v^k_j — k-я компонента скорости распространения колебаний в j-й ветви; параметр $\gamma = 1, 2, 3$ нумерует ветвь локальных колебаний; M, m — массы центров тяжести элементарной ячейки без примеси и с примесью соответственно; ω_1 — частота колебаний нижней границы оптической полосы; N — число элементарных ячеек; V_0 — их объем; r_n — расстояние от примесного центра до n-го узла кристаллической решетки; $p_\alpha (\mathbf{q} j)$ — α-компонента вектора поляризации акустической моды $(\mathbf{q} j)$; a^+, b^+ $(a,\ b)$ — операторы рождения (уничтожения) локальных и кристаллических фононов соответственно.

Используя развитый Зубаревым метод НСО [1], можно получить кинетическое уравнение для обратной температуры $\beta_{\rm I} = 1/kT_{\rm I}$ (k — постоянная Больцмана) спиновой подсистемы

$$d\beta_{\rm I}/dt = (-1/\tau) \left[\beta_{\rm I} - \beta_l + \alpha (\beta_{л} - \beta_l) \right], \tag{7}$$

где $\beta_{л}$, β_l — обратные температуры подсистем локальных и кристаллических фононов; $\tau \equiv \tau_1$; $\alpha = \tau_1/\tau_2$; τ_1, τ_2 — характерные времена релаксаций

$$\tau_{1(2)} = - \frac{\partial \langle H_1 \rangle_q}{\partial \beta_{\rm I}} \left[\int\limits_0^1 d\lambda \int\limits_{-\infty}^{0} L_{1(2)} (t,\ \lambda E)\, dt \right]^{-1}. \tag{8}$$

$H_{\rm I}$ — гамильтониан зеемановского взаимодействия; t — время; λ — параметр интегрирования [1]; $E = \sum\limits_{n=1}^{3} \beta_n H_n$; индекс $n = 1$ нумерует спиновую подсистему, $n = 2$, 3 — подсистемы локальных и кристаллических фононов соответственно; $L_1 = \langle K_1 (t,\ \lambda E)\, K_1 \rangle_q$, $L_2 = \langle K_2 (t,\ \lambda E)\, K_1 \rangle_q$ — корреляционные функции; $K_n = i\, [H^{(3)}_Q,\ H_n]$ — поток энергии n-й подсистемы

$$K_n (t,\ \lambda E) = e^{\lambda E} e^{iHt} K_n e^{-iHt} e^{-\lambda E}, \tag{9}$$

$\langle \ldots \rangle_q = {\rm Sp}\, (\rho_q \ldots)$ — среднее значение соответствующей величины; $\rho_q = ({\rm Sp}\, e^{-E})^{-1} e^{-E}$ — квазиравновесная матрица плотности; $H = \sum\limits_{n=1}^{3} H_n + H^{(3)}_Q$ — полный гамильтониан рассматриваемой системы.

Как видно из (7), в стационарном состоянии

$$\beta^0_{\rm I} = \beta^0_l + \alpha (\beta^0_l - \beta^0_{л}). \tag{10}$$

При лазерном облучении $\beta^0_{л} \ll \beta^0_l$ и, следовательно,

$$\beta^0_{\rm I} = (1 + \alpha)\, \beta^0_l. \tag{11}$$

Следует отметить, что (10) справедливо и в случае $\beta^0_l - \beta^0_{л} = 0$, т. е. при равномерном разогреве фононной подсистемы, когда, строго говоря, при вычислении α необходимо учесть многоквантовые процессы в фононной системе, протекающие без участия локальных фононов. При этом, как видно из (10), в стационарном состоянии рассматриваемая система будет эргодической ($\beta^0_{\rm I} = \beta^0_l = \beta^0_{л}$).

В зависимости от соотношения между температурами подсистем локальных и кристаллических фононов можно выделить два случая.

1) $\beta_l \omega_л \ll 1$, $\beta_л \omega_л \ll 1$, т. е. имеет место сильный разогрев всей фононной подсистемы. Вычисляя корреляторы L_1 и L_2 и используя (8), для времени релаксации τ и параметра α можно получить следующие выражения:

$$\tau = \frac{C\varkappa^2}{\chi_2} \frac{\beta_л \beta_l^2}{\omega_D^3}, \quad \alpha = \varkappa \left(\frac{\chi_1}{\chi_2} + \beta_l \omega_D \right), \tag{12), (13}$$

где $\varkappa = \omega_л / \omega_D$, ω_D — частота Дебая,

$$\chi_1 = \frac{2}{3} \varkappa - \frac{1}{2}, \quad \chi_2 = \left(\chi_1 - \frac{1}{2} \right) \frac{\varkappa}{2} + \frac{1}{5}, \tag{14), (15}$$

$$C = \frac{5}{2} (GS)^{-1}, \quad G = \frac{R^2}{2\pi^3} \left(\frac{V_0}{v_0^3} \right)^2 (4d - 3), \quad d = l(l + 1),$$

$$S = N^2 \sum_{m, j, j', \gamma} m^2 B_{-m}^{jj'\gamma} B_m^{jj'\gamma}.$$

Как видно из (12), время релаксации τ обратно пропорционально произведению температуры подсистемы локальных фононов и квадрата температуры подсистемы кристаллических фононов. Используя (13)—(15), легко показать, что при любых значениях $\varkappa > 1$ параметр $\alpha > 0$. При этом, согласно (11), $\beta_I^0 > \beta_l^0$ и, следовательно при лазерном облучении сильно разогретого кристалла в стационарном состоянии вся система является неэргодической, причем температура спиновой подсистемы ниже температуры подсистемы кристаллических фононов.

Следует отметить, что при высоких температурах для скорости релаксации зависимость $\tau^{-1} \sim T_l^2$ справедлива и для двухфононных процессов, протекающих в подсистеме кристаллических фононов. Поэтому трехфононные процессы будут вносить доминирующий вклад в спин-решеточную релаксацию лишь при условии $T_л \gg T_l$.

2) $\beta_l \omega_л \gg 1$, $\beta_л \omega_л \ll 1$, т. е. имеет место разогрев локальных колебаний при низких температурах. Как показывают расчеты, в этом случае

$$\tau = \frac{C\varkappa^3}{\chi_2'} \frac{\beta_l \beta_л}{\omega_D^4}, \quad \alpha = 3\varkappa \frac{\chi_1'}{\chi_2'} - 1, \tag{16), (17}$$

где

$$\chi_1' = \frac{\varkappa^2}{4} - \frac{2}{5} \varkappa + \frac{1}{6}, \quad \chi_2' = \frac{\varkappa^3}{4} - \frac{3}{5} \varkappa^2 + \frac{\varkappa}{2} - \frac{1}{7}.$$

Таким образом, согласно (16), при облучении лазером кристалла при низких температурах время спин-решеточной релаксации обратно пропорционально произведению температур подсистем локальных и кристаллических фононов. Скорость релаксации при этом $\tau^{-1} \sim (T_l / T_D) T_л$, тогда как при низких температурах в случае двухфононных процессов в подсистеме кристаллических фононов $\tau^{-1} \sim (T_l / T_D)^7$. Однако ввиду того что $T_l \ll T_D$, а $T_л \gg T_l$, основной вклад во время спин-решеточной релаксации описывается выражением (16).

При более слабом разогреве локальных колебаний (степень разогрева определяется величиной электрон-колебательной связи, обусловливающей передачу энергии лазерного излучения фононной подсистеме, и интенсивностью лазерного излучения [2]), когда $\beta_л \omega_л \gg 1$, $\tau \sim e^{\beta_л \omega_л}$, т. е. время спин-решеточной релаксации экспоненциально растет при понижении температуры подсистемы локальных фононов.

Согласно (11), (17), в стационарном состоянии

$$\beta_I^0 = 3\varkappa \frac{\chi_1'}{\chi_2'} \beta_l^0.$$

Этот результат справедлив как при сильном, так и при слабом разогреве локальных колебаний. Легко показать, что $\chi_1' / \chi_2' > 0$ при любых значениях $\varkappa > 1$ и при всех разумных значениях $\varkappa$ $\beta_I^0 > \beta_l^0$, т. е., как и в первом случае высоких температур, разогрев локальных колебаний при низких температурах переводит рассматриваемую систему в неэргодическое состояние, причем в стационарном состоянии спиновая подсистема разогрета слабее подсистемы кристаллических фононов.

Как показывают оценки, время спин-решеточной релаксации для системы $KI : Cs^+$ (в случае «2») ~ 0.1 с.

Список литературы

[1] Александров И. В. Теория магнитной релаксации. М.: Наука, 1975. 400 с.
[2] Kovarskii V. A., Popov E. A., Chaikovskii I. A. // Phys. St. Sol. 1975. V. 67. N 2. P. 427—433.
[3] Буишвили Л. Л., Топчян И. И. // ФТТ. 1986. Т. 28. № 10. С. 3000—3005.
[4] Буишвили Л. Л., Топчян И. И. // ФТТ. 1989. Т. 31. № 3. С. 60—63.
[5] Сликтер Ч. Основы теории магнитного резонанса. М.: Мир, 1967. 324 с.
[6] Гиоргадзе Н. П., Харадзе Г. А. // ЖЭТФ. 1967. Т. 53. № 4 (10). С. 1390—1394.
[7] Косевич А. М. Основы механики кристаллической решетки. М.: Наука, 1975. 400 с.

Институт физики АН ГрузССР
Тбилиси

Поступило в Редакцию
22 февраля 1990 г.