

УДК 539.2

## СПЕКТРАЛЬНАЯ ДИФФУЗИЯ В УСЛОВИЯХ РАДИОЧАСТОТНОГО НАСЫЩЕНИЯ И НАЛИЧИЯ СПИН-ФОНОННОЙ СВЯЗИ

Р. Х. Сабиров

Исследовано влияние радиочастотного насыщения и спин-фононного взаимодействия на спектральную диффузию. Во втором порядке по взаимодействиям получено выражение для коэффициента спектральной диффузии. Спин-фотонное и спин-фононное взаимодействия приводят к существенному уменьшению эффективности спектральной диффузии. Это обстоятельство необходимо учитывать при интерпретации экспериментальных результатов.

1. В реальных кристаллах с малой концентрацией парамагнитной примеси обычно имеет место неоднородное уширение линий ЭПР. Исследование динамики спиновых систем в условиях неоднородного уширения представляет собой весьма сложную задачу. Поэтому, следуя Портису [1, 2], систему электронных спинов рассматривают как набор спиновых пакетов с различными резонансными частотами  $\omega_n$ ,  $n$  — номер спинового пакета. Каждый пакет содержит спины, приблизительно имеющие одинаковую резонансную частоту. Различные пакеты не являются независимыми, они связаны посредством диполь-дипольного взаимодействия, которое обуславливает кросс-релаксацию или, иначе говоря, спектральную диффузию [1-3].

Спектральная диффузия играет важную роль при насыщении неоднородно уширенной линии [4, 5], в различного рода динамических эффектах, например в динамической поляризации ядер [6, 7]. В связи с этим исследование спектральной диффузии представляет несомненный интерес. Обычно в расчетах предполагают сильную спектральную диффузию и рассмотрение ведут с момента установления квазиравновесия в спин-системе. Однако если это условие не выполняется, то ход явления может существенно измениться. Поэтому необходимо изучение влияния различных взаимодействий на сам процесс спектральной диффузии.

В настоящей работе рассматривается влияние радиочастотного насыщения и спин-фононного взаимодействия на коэффициент спектральной диффузии. Как РЧ поле, так и спин-фононное взаимодействие присутствуют в реальных экспериментальных ситуациях.

2. Гамильтониан исследуемой системы представим в виде ( $\hbar = 1$ )

$$H = \sum_n H_n + H_d + H_{c-r} + H_\Phi + H_{ph} + H_{s-\Phi} + H_{s-ph}, \quad (1)$$

где

$$H_n = \omega_n \sum_j S_{nj}^z, \quad H_d = 1/2 \sum_{ijnn'} A_{ij} S_{ni}^z S_{n'j}^z + \sum_{ijn} B_{ij} S_{ni}^+ S_{nj}^-,$$

$$H_{c-r} = \sum_{\substack{ijn \\ (n \neq n')}} B_{ij} S_{ni}^+ S_{n'j}^-, \quad H_\Phi = \Omega B^+ B, \quad H_{ph} = \sum_q \omega_q b_q^+ b_q,$$

$$\tilde{H}_{s-\phi} = G \sum_{nj} (S_{nj}^+ + S_{nj}^-) (B + B^+), \quad (2)$$

$$H_{s-ph} = i \sum_{njq} (g_q^- S_{nj}^+ + g_q^+ S_{nj}^-) (b_q - b_q^+).$$

Здесь  $H_n$  — зеемановский гамильтониан  $n$ -го спинового пакета,  $H_d$  — секулярная часть диполь-дипольного взаимодействия,  $H_{c-r}$  — кросс-релаксационная часть диполь-дипольного взаимодействия, ответственная за спектральную диффузию,  $H_\phi$ ,  $H_{ph}$  — гамильтонианы фотонов и фононов соответственно,  $H_{s-\phi}$ ,  $H_{s-ph}$  — гамильтонианы спин-фотонного и спин-фононного взаимодействий,  $S_{nj}^z$ ,  $S_{nj}^\pm$  — продольная и поперечные компоненты  $j$ -го спина, принадлежащего  $n$ -му пакету,  $B^+(B)$  и  $b_q^+(b_q)$  — операторы рождения (уничтожения) соответственно фотона и фонона частот  $\Omega$  и  $\omega_q$ ,  $A_{ij}$  и  $B_{ij}$  — константы, характеризующие величину диполь-дипольного взаимодействия,  $G$  и  $g_q^\pm$  — константы спин-фотонного и спин-фононного взаимодействий.

Расчет проведем по аналогии с работой [8], в которой исследовано явление уменьшения величины диполь-дипольного взаимодействия за счет взаимодействия спинов с фононами. В данном разделе пренебрежем спин-фононным взаимодействием. Определим оператор  $\exp(A)$ , где

$$A = G \sum_{nj} \{(\Omega - \omega_n)^{-1} (BS_{nj}^+ - B^+ S_{nj}^-) + (\Omega + \omega_n)^{-1} (BS_{nj}^- - B^+ S_{nj}^+)\}, \quad (3)$$

и с его помощью проведем преобразование гамильтониана (1):

$$\tilde{H} = e^{-A} H e^A = H - [A, H] + (1/2) [A, [A, H]] + O(G^3). \quad (4)$$

Легко видеть, что преобразованный гамильтониан не содержит  $H_{s-\phi}$ . Принимая во внимание коммутационные свойства операторов  $A$  и  $H$ , выражение (4) представим в виде

$$\tilde{H} = \tilde{H}_z + \tilde{H}_d + \tilde{H}_{c-r} + H_\phi, \quad (5)$$

где

$$\tilde{H}_z = \sum_n H_n - 2G^2 \sum_{nj} \frac{\omega_n}{\Omega^2 - \omega_n^2} (B^+ B + BB^+) S_{nj}^z; \quad (6)$$

$$\begin{aligned} \tilde{H}_d = & H_d - 2G^2 \sum_{e_j n n'} A_{ej} \left( \frac{B^+ B}{(\Omega + \omega_n)^2} + \frac{BB^+}{(\Omega - \omega_n)^2} \right) S_{nj}^z S_{n'e}^z + \\ & + 4G^2 \sum_{\substack{e_j n n' \\ (n \neq n')}} B_{ej} \frac{\Omega^2 + \omega_n \omega_{n'}}{(\Omega^2 - \omega_n^2)(\Omega^2 - \omega_{n'}^2)} (BB^+ + B^+ B) S_{nj}^z S_{n'e}^z + \\ & + 2G^2 \sum_{e_j n} B_{ej} \left( \frac{B^+ B}{(\Omega - \omega_n)^2} + \frac{BB^+}{(\Omega + \omega_n)^2} \right) (2S_{nj}^z S_{ne}^z - S_{nj}^+ S_{ne}^-) + \\ & + G^2 \sum_{e_j n} A_{ej} \left( \frac{B^+ B}{(\Omega + \omega_n)^2} + \frac{BB^+}{(\Omega - \omega_n)^2} \right) S_{nj}^+ S_{ne}^-; \end{aligned} \quad (7)$$

$$\begin{aligned} \tilde{H}_{c-r} = & H_{c-r} + G^2 \sum_{\substack{e_j n n' \\ (n \neq n')}} A_{ej} \left( \frac{B^+ B}{(\Omega + \omega_n)(\Omega + \omega_{n'})} + \right. \\ & \left. + \frac{BB^+}{(\Omega - \omega_n)(\Omega - \omega_{n'})} \right) S_{nj}^+ S_{n'e}^- - \end{aligned} \quad (8)$$

$$-2G^2 \sum_{\substack{e|nn' \\ (n \neq n')}} B_{ej} \frac{\Omega^2 + \omega_n^2}{(\Omega^2 - \omega_n^2)^2} (B^+ B + B B^+) S_{n'e}^+ S_{nj}^-.$$

В (5) мы отбросили все члены порядка  $G^3$  и выше. Более того, мы сохранили лишь секулярные по отношению к  $H_n$  члены и члены, ответственные за спектральную диффузию (мы не рассматриваем диффузию, обусловленную взаимодействием спинов через поле фотонов). Подчеркнем, что в (6), (7) и (8) мы пренебрегли членами, пропорциональными  $BV$  и  $V+B^+$ , по сравнению с членами, пропорциональными  $B^+V$  и  $VB^+$ . Все эти приближения являются хорошо оправданными и не влияют на общность выводов.

Выражения (6)–(8) можно дополнительно упростить, заменив операторы  $B^+V$  и  $VB^+$  их средними значениями и вспомнив, что для диполь-дипольного взаимодействия  $A_{ij} = -4B_{ij}$ . В результате мы получим некоторый эффективный спиновый гамильтониан вида

$$H_{\text{эфф}} = \sum_n H_n^* + H_d^* + H_{c-r}^*, \quad (9)$$

где

$$H_n^* = \omega_n \left( 1 - 4G^2 \frac{N}{\Omega^2 - \omega_n^2} \right) \sum_j S_{nj}^z; \quad (10)$$

$$H_d^* = \frac{1}{2} \sum_{e|nn'} A_{ej} \left\{ 1 - 4G^2 \frac{N}{\Omega^2 - \omega_n^2} \left( \frac{\Omega^2 + \omega_n \omega_{n'}}{\Omega^2 - \omega_{n'}^2} + 2 \frac{\Omega^2 + \omega_n^2}{\Omega^2 - \omega_n^2} \right) \right\} \times \\ \times S_{nj}^z S_{n'e}^z + \sum_{e|jn} B_{ej} \left\{ 1 - 12G^2 N \frac{\Omega^2 + \omega_n^2}{(\Omega^2 - \omega_n^2)^2} \right\} S_{nj}^+ S_{n'e}^-; \quad (11)$$

$$H_{c-r}^* = \sum_{\substack{e|nn' \\ (n \neq n')}} B_{ej} \left\{ 1 - 4G^2 \frac{N}{\Omega^2 - \omega_n^2} \left( 2 \frac{\Omega^2 + \omega_n \omega_{n'}}{\Omega^2 - \omega_{n'}^2} + \frac{\Omega^2 + \omega_n^2}{\Omega^2 - \omega_n^2} \right) \right\} S_{nj}^+ S_{n'e}^-. \quad (12)$$

В этих выражениях  $N = \langle B^+ B \rangle$  — среднее число фотонов частоты  $\Omega$ , причем мы считаем  $N \gg 1$ .

3. Гамильтониан  $H_{\text{эфф}}$  (9) позволяет исследовать влияние РЧ поля на спектральную диффузию стандартным образом, например методом неравновесного статистического оператора Зубарева, как это проделано в [6] без учета влияния РЧ поля. Для упрощения расчета мы в фигурных скобках выражений (11) и (12) примем  $\omega_{n'} = \omega_n$ . В указанном приближении учет РЧ поля сводится к перенормировке констант диполь-дипольного взаимодействия по одному закону как в секулярной, так и в кросс-релаксационной частях. Поэтому непосредственно можно воспользоваться хорошо известным выражением для коэффициента спектральной диффузии в отсутствие каких-либо возмущений:

$$D(\omega) = \pi f \Delta_{c-r}^2 g(\omega - \omega_0) \sum_j B_{ij}^2. \quad (13)$$

Здесь  $f$  — концентрация парамагнитной примеси,  $D_{c-r}^2$  — второй момент линии кросс-релаксации,  $g(\omega - \omega_0)$  — неоднородная форма линии ЭПР,  $\omega_0$  — частота центра тяжести этой линии. Отсюда в хорошем приближении можно написать

$$D_{\text{пр}}(\omega) = \left( 1 - 12G^2 N \frac{\Omega^2 + \omega^2}{(\Omega^2 - \omega^2)^2} \right)^4 D(\omega), \quad (14)$$

если считать, что  $g(\omega)$  не зависит от насыщения.

Таким образом, РЧ насыщение приводит к замедлению спектральной диффузии. Разумеется, что формула (14) неприменима при строго резонансном насыщении ( $\Omega = \omega$ ), когда следует ожидать наибольшего изменения коэффициента диффузии. Однако даже при частотах  $\omega$ , существенно отличных от  $\Omega$ , имеет место резкое уменьшение коэффициента спектральной диффузии. Так, если член с  $G^2$  в (14) равен лишь 0,1, коэффициент диффузии уменьшается в 1,5 раза под влиянием РЧ поля.

4 Рассмотрение влияния спин-фононного взаимодействия можно провести по аналогичной схеме. Роль оператора  $A$  (3) теперь принадлежит оператору

$$B = i \sum_{qjn} \{ (\omega_q - \omega_n)^{-1} (g_q^- b_q S_{nj}^+ + g_q^+ b_{-q}^+ S_{nj}^-) + (\omega_q + \omega_n)^{-1} (g_q^+ b_q S_{nj}^- + g_q^- b_{-q}^- S_{nj}^+) \}, \quad (15)$$

а во всем остальном расчет остается без изменений. Легко сообразить, что в результате для коэффициента диффузии мы получим выражение вида (14), в котором  $G^2$ ,  $\Omega$  и  $N$  соответственно заменены на  $g_q^+ g_{-q}^-$ ,  $\omega_q$  и число фононов, а также проведено суммирование по  $q$ . Следовательно, можно сделать вывод, что спин-фононное взаимодействие приводит к уменьшению эффективности спектральной диффузии.

При одновременном присутствии спин-фотонного и спин-фононного взаимодействия их вклады в  $D(\omega)$  необходимо учитывать одновременно. Однако с точностью до второго порядка по взаимодействиям эти вклады аддитивны.

5. Таким образом, как РЧ насыщение, так и спин-фононное взаимодействие ослабляют спектральную диффузию. Однако следует помнить, что этот вывод, строго говоря, верен лишь в случае слабых взаимодействий (тем не менее коэффициент диффузии при этом может существенно уменьшиться). В случае сильных взаимодействий важным может оказаться механизм кросс-релаксации за счет взаимодействия спинов через поля фононов и фотонов. Это должно привести к увеличению эффективности спектральной диффузии.

В заключение отметим, что результаты (9)—(11) при условии  $\omega_n = \omega_0$  позволяют рассмотреть влияние нерезонансного насыщения на спиновую диффузию. Связь между коэффициентами спиновой диффузии  $D_{\text{пр}}$  и  $D$  аналогична связи (14) с заменой в последней показателя степени 4, в которую возводится выражение в круглой скобке, на единицу. Любопытно, что спектральная диффузия значительно чувствительнее к РЧ насыщению, чем спиновая диффузия. Подробное исследование влияния как строго резонансного, так и нерезонансного радиочастотного насыщения на спиновую диффузию дано в [9].

Следует помнить, что полученные результаты справедливы лишь в высокотемпературном пределе ( $kT \gg \omega_n$ ,  $k$  — постоянная Больцмана,  $T$  — температура). При низких температурах РЧ насыщение, по-видимому, может не замедлить, а усилить спектральную диффузию. Дело в том, что при малой степени возбуждения спиновой системы РЧ насыщение приведет к возбуждению части спинов на верхний уровень, т. е. к увеличению в системе спиновых возбуждений. Естественно, что при этом появится отличная от нуля вероятность миграции этой энергии по различным спинам из-за диполь-дипольного взаимодействия.

## ЛИТЕРАТУРА

1. Portis A. M. — Phys. Rev., 1953, **91**, p. 1070.
2. Portis A. M. — Phys. Rev., 1956, **104**, p. 584.
3. Kiel A. — Phys. Rev., 1962, **125**, p. 1451.
4. Буншвили Л. Л., Звиададзе М. Д., Хуцишвили Г. Р. — ЖЭТФ, 1969, **56**, с. 290.
5. Гринберг Е. С. — Изв. вузов — Физика, 1978, **8**, с. 70.
6. Буншвили Л. Л., Звиададзе М. Д., Хуцишвили Г. Р. — ЖЭТФ, 1968, **54**, с. 876.
7. Ацаркин В. А. — УФН, 1978, **126**, с. 3.
8. Carbonaro P., Persico F. — Solid. St. Comm., 1977, **22**, p. 741.
9. Сабиров Р. Х. — ФТТ, 1979, **21**, с. 1965.

Московский государственный  
педагогический институт  
им. В. И. Ленина

Поступила в редакцию  
18 января 1980 г.,  
после доработки  
18 сентября 1980 г.

## SPECTRAL DIFFUSION UNDER THE CONDITION OF RADIO FREQUENCY SATURATION AND THE PRESENCE OF SPIN-PHONON RELATION

*R. Kh. Sabirov*

An effect of radio frequency saturation and spin-phonon interaction on the spectral diffusion is studied. In the second interaction order an expression has been derived for the coefficient of the spectral diffusion. Spin-photon and spin-phonon interactions result in essential decrease of the effective spectral diffusion. This circumstance is necessary to take into account when interpreting the experimental results.

---