

## СПИН-РЕШЕТОЧНАЯ РЕЛАКСАЦИЯ И НЕРАВНОВЕСНЫЕ ФОНОНЫ В РУБИНЕ

*В. Л. Шехтман, А. Ф. Якубов*

Показано, что в режиме компенсированной диффузии фононов  $29 \text{ см}^{-1}$  в оптически возбужденном рубине в сильном внешнем магнитном поле интеграл неупругих столкновений с переворотом спина в  $\bar{E}$ -состоянии почти полностью скомпенсирован, даже если заселенности крамерсовских подуровней сильно отличаются по величине. При этом переходы с переворотом спина, весьма вероятные при сильном плении, происходят вхолостую, не выравнивая в стационарных опытах эти заселенности. При очень сильном оптическом возбуждении разрушение спиновой памяти в  $\bar{E}$ -состоянии, т. е. выравнивание заселенностей, обусловлено влиянием стоковских релаксационных высокочастотных фононов, которые влияют не только на генерацию фононов  $29 \text{ см}^{-1}$ , но и на сам механизм плениения фононов  $29 \text{ см}^{-1}$ . Рассмотренный механизм спиновой релаксации существенно отличается от известной орбаховской релаксации и необходим для объяснения и понимания экспериментальных данных по неравновесным фононам  $29 \text{ см}^{-1}$  в оптически возбужденном рубине.

В работе представлены результаты теоретического исследования спиновой релаксации парамагнитных ионов в кристаллах, вызванной многократным резонансным рассеянием термодинамически неравновесных фононов. Как актуальный пример рассмотрена спиновая релаксация крамерсовского уровня  $\bar{E}$  ( ${}^2E$ ) ионов хрома в оптически возбужденном рубине  $\text{Al}_2\text{O}_3 : \text{Cr}^{3+}$ . При достаточно низкой температуре эта релаксация обусловлена многократным перерассеянием (плениением) неравновесных фононов  $29 \text{ см}^{-1}$ , резонансных с  $\bar{E} - 2\bar{A}$  переходом ионов  $\text{Cr}^{3+}$ . Плениение фононов  $29 \text{ см}^{-1}$  интенсивно исследовалось в последние годы многими авторами (см. обзоры [1, 2]).

Данный механизм спиновой релаксации отличается необычными свойствами, а именно: вероятности  $\bar{E}_+ \leftrightarrow \bar{E}_-$  переходов между спиновыми подуровнями, индуцированные плененными фононами, как оказывается, не влияют на заселенности этих подуровней, даже когда эти вероятности переворота спина значительно превышают вероятность радиационного затухания  $\bar{E}$ -уровня. Это приводит к сохранению спиновой памяти, что наблюдается на опыте [3, 4] в виде неравенства соответствующих заселенностей  $N_+$  и  $N_-$  уровней  $\bar{E}_+$  и  $\bar{E}_-$ , которое имеет место даже при сильном плениении и соответственно больших числах заполнения фононов  $29 \text{ см}^{-1}$ .

Таким образом, в данном случае имеет место ситуация, когда две неравновесные системы — спиновые подуровни  $\bar{E}_\pm$  и фононы  $29 \text{ см}^{-1}$  — находятся в состоянии «внутреннего равновесия»; при этом фактическая релаксация происходит только за счет малого отклонения соответствующего интеграла столкновений (см. ниже) от нуля, а взаимодействие с окружением (термостатом) является слабым. В этом заключается принципиальное отличие данного механизма релаксации от известного механизма Орбаха—Аминова, который в рубине тоже обусловлен фононами  $29 \text{ см}^{-1}$ , но в условиях их термодинамического равновесия [5, 6]. Существенно подчеркнуть, что объяснение опытных данных [3, 4] на основе орбаховской релаксации путем формального пересчета числа заполнения невозможно.

Перейдем к более детальному изложению существа дела. Наблюдаемые в стационарных опытах [3] заселенности  $\bar{E}_{\pm}$  уровней по интенсивности зеемановских компонент  $R_1$  линии либо косвенно по степени пленения [4] удовлетворяют следующим кинетическим уравнениям:

$$\begin{aligned} \dot{N}_- &= -\tau_-^{-1} N_- + \Lambda_- + \lambda_- (\Gamma^{(+)} / \Gamma) + \lambda_+ (\Gamma^{(-)} / \Gamma) + S = 0, \\ \dot{N}_+ &= -\tau_+^{-1} N_+ + \Lambda_+ + \lambda_- (\Gamma^{(-)} / \Gamma) + \lambda_+ (\Gamma^{(+)} / \Gamma) - S = 0, \end{aligned} \quad (1)$$

где  $\tau_{\pm}$  — радиационные времена жизни;  $\Lambda_{\pm}$  — накачка  $\bar{E}_{\pm}$  уровней;  $\lambda_{\pm}$  — накачка  $2\bar{A}_{\pm}$  уровней;  $\Gamma^{(\pm)}$  — вероятности спонтанных  $2\bar{A} \rightarrow \bar{E}$  переходов с переворотом (—) и без переворота (+) спина в единицу времени;  $\Gamma = \Gamma^{(+)} + \Gamma^{(-)}$  — обратное время жизни  $2\bar{A}$ -уровня, обусловленное спонтанным испусканием фононов  $29 \text{ см}^{-1}$ . Вследствие правил отбора по спину  $\lambda_- > \lambda_+$  и  $\Lambda_- > \Lambda_+$ , кроме того,  $\tau_- > \tau_+$  из-за реабсорбции света. Интеграл неупругих столкновений с переворотом спина отвечает за спиновую релаксацию и дается выражением

$$S = \int d\omega \rho(\omega) [N_+ \sigma_{+-}(\omega) - N_- \sigma_{-+}(\omega)], \quad (2)$$

где  $\rho(\omega)$  определяет спектральную плотность фононов;  $\sigma_{+-}$ ,  $\sigma_{-+}$  — эффективные сечения резонансного комбинационного рассеяния фононов (РКР) с переворотом спина [7]. В данном случае в отличие от теплового равновесия функция  $\rho(\omega)$  не является наперед заданной, а определяется самим процессом пленения фононов, в частности многократным РКР с переворотом спина. Следовательно,  $\rho(\omega)$  существенно зависит от величин  $N_{\pm}$ , а уравнения (1) являются нелинейными. Их надо решать самосогласованно с интегральными уравнениями переноса плененных фононов [7-9], что и было нами сделано.

В сильном внешнем магнитном поле функция  $\rho(\omega)$  представляет собой квартет резонансных пиков  $\rho_i(\omega)$ ,  $i=1, 2, 3, 4$  на частотах  $2\bar{A}_{\pm} - \bar{E}_{\pm}$  переходов. Эти частоты определяются зеемановским расщеплением  $2\bar{E}(E, 2\bar{A})$  состояния. Поэтому (2) можно записать как

$$S = \frac{\Gamma^{(-)}\Gamma^{(+)}}{\Gamma^2} \int \sigma(\omega) [N_+ \rho_1(\omega) - N_- \rho_2(\omega) + N_+ \rho_3(\omega) - N_- \rho_4(\omega)] d\omega. \quad (3)$$

Решение уравнений для функций  $\rho_i$  представляют собой сумму двух членов  $\rho_i(\omega) = \rho_i^{(0)} + \delta\rho_i$ . Первое слагаемое  $\rho_i^{(0)}(\omega)$  отвечает фононам, равновесным по отношению к РКР, т. е.

$$N_+ \rho_1^{(0)} = N_- \rho_2^{(0)}, \quad N_+ \rho_3^{(0)} = N_- \rho_4^{(0)}. \quad (4)$$

Соответствующие им вероятности  $\bar{E}_+ \leftrightarrow \bar{E}_-$  переходов имеют вид

$$W_{+-}^{(0)} = \frac{\Gamma^{(-)}\Gamma^{(+)}}{\Gamma^2} \int \sigma(\omega) [\rho_1^{(0)}(\omega) + \rho_2^{(0)}(\omega)] d\omega \quad (5)$$

и приблизительно равны  $W_{+-}^{(0)} + W_{-+}^{(0)} \simeq 4 (\Gamma^{(-)}\Gamma^{(+)}/\Gamma) \eta$ , где  $\eta = N_{2\bar{A}}/N_E \simeq R_2/R_1$  — число заполнения для неравновесных фононов  $29 \text{ см}^{-1}$ . Напомним, что аналогичное соотношение имеет место при орбаховской релаксации, причем  $\eta \sim e^{-\Delta/kT}$  [5].

Однако сравнительно большие по величине (при достаточно сильном пленении) вероятности (5) в отличие от орбаховской релаксации не дают никакого вклада в интеграл столкновений (2) и поэтому не могут повлиять на отношение  $N_-/N_+$ . Действительно, на основании (4), (5) из (3) получаем, что  $S^{(0)} = N_+ W_{+-}^{(0)} - N_- W_{-+}^{(0)} = 0$  независимо от величин  $N_{\pm}$ . Поэтому об отношении заселенностей  $N_-/N_+$  нельзя судить по величине числа заполнения  $\eta = R_2/R_1$ , как это считалось ранее [1, 7] по аналогии с орбаховской релаксацией. На самом деле роль играет лишь сравнительно небольшая доля фононов  $\delta\rho_i$ , не равновесных по отношению к РКР; при этом оказывается, что  $S$  (3) в случае пространственной диффузии фононов (с учетом РКР) — так называемой «компенсированной» диффузии — не

зависит от числа заполнения и степени пленения фононов, а именно в этом случае

$$S = \lambda_+ \frac{N_+^2 (\Gamma^{(+)} / \Gamma)^2 - N_-^2 (\Gamma^{(-)} / \Gamma)^2}{N_+^2 (\Gamma^{(-)} / \Gamma) + N_+^2 (\Gamma^{(+)} / \Gamma)} + \lambda_- \frac{N_+^2 (\Gamma^{(-)} / \Gamma)^2 - N_-^2 (\Gamma^{(+)} / \Gamma)^2}{N_-^2 (\Gamma^{(+)} / \Gamma) + N_-^2 (\Gamma^{(-)} / \Gamma)}. \quad (6)$$

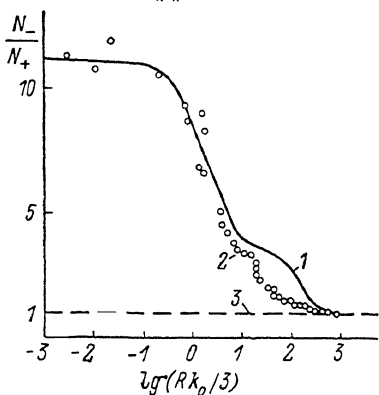
В пренебрежении членами порядка  $\Gamma^{(-)} / \Gamma$  имеем  $S \approx \lambda_+ (\Gamma^{(+)} / \Gamma) - \lambda_- (\Gamma^{(-)} / \Gamma)$ . Это находится в соответствии с тем, что выход фононов из возбужденного объема в основном происходит за счет «флип-спин» резонансов, которым отвечает большая длина свободного пробега. Теперь уравнения (1) легко решаются

$$N_+ \approx \tau_+ (\Delta_+ + \lambda_-), \quad N_- \approx \tau_- (\Delta_- + \lambda_+), \quad (7)$$

что, однако, имеет нетривиальный физический смысл, а именно согласно (7), наша нелинейная задача с многократным РКР эффективно свелась к обращению правил отбора для  $2\bar{A} \rightarrow \bar{E}$  релаксации, т. е. переход с переворотом спина оказался разрешенным, и наоборот.<sup>1</sup> Из (7) следует также, что при резонансном возбуждении, например,  $2\bar{A}_-$ -уровня происходит обращение заселенностей  $N_+ \gg N_-$ . Эти на первый взгляд странные следствия

Зависимость отношения  $N_- / N_+$  от параметра  $Rk_0$ .

$R$  — радиус лазерного луча,  $k_0 = \sigma_0 N^*$ ,  $\sigma_0 = 0.8 \cdot 10^{-13}$  см<sup>2</sup>,  $N^* = N_- + N_+$  (по условиям опыта [3]). 1 — теоретическая кривая при  $\beta = 0.4$ , имеющая вид двойного плеча; 2 — экспериментальные данные [3] в пересчете на шкалу  $N^* = N_- + N_+$ ; 3 — асимптота  $N_- + N_+ = 1$  при  $Rk_0 \rightarrow \infty$ .



обусловлены, формально говоря, наличием обратной связи нелинейных уравнений (1) для матрицы плотности  $\bar{E}_\pm$  дублета через РКР.

Используя эмпирическое значение коэффициента ветвления накачки  $\beta \approx 0.4$  [1], а также измеренный в [10] коэффициент спиновой памяти, мы получили хорошее согласие предложенной теории с экспериментом [3, 4] (см. рисунок). При этом учитывалось существенное при достаточно сильном пленении неупругое рассеяние высокочастотных стоксовских фононов на  $\bar{E} - 2\bar{A}$  переходах, наблюдавшееся в [11]. С учетом последнего обстоятельства

$$\begin{aligned} \dot{N}_+ &= 0 = -\tau_+^{-1} N_+ + \Delta_+ + \lambda_- - w N_+ + w N_-, \\ \dot{N}_- &= 0 = -\tau_-^{-1} N_- + \Delta_- + \lambda_+ - w N_- + w N_+. \end{aligned} \quad (8)$$

Величина  $w$ , определяющая в (7) вероятность переворота спина в  $\bar{E}$ -состоянии, является на самом деле вероятностью в единицу времени  $\bar{E} \rightarrow 2\bar{A}$  перехода без переворота спина (мы это подчеркиваем), индуцированного стоксовскими фононами. Этот парадокс объясняется вышеупомянутым обращением правил отбора по спину, обусловленного наличием обратной связи в нелинейной системе, причем стоксовские релаксационные фононы осуществляют дополнительную обратную связь. Из (8) видно, что с усилением накачки и соответствующим ростом величины  $w$  отношение  $N_- / N_+$  стремится к единице, т. е. спиновая память в  $\bar{E}$ -состоянии разрушается, что находится в согласии с опытом (см. рисунок). Величину  $w$  нетрудно оценить из сравнения результатов стационарных и импульсных опытов по пленению фононов  $29$  см<sup>-1</sup>. Согласно [11],  $\eta = \tau_1 (w + \beta / \tau_{R1})$ , где  $\tau_1 = MT$  — временная задержка при многократном рассеянии [7], т. е. время пленения. При сильном пленении  $w$  достигает значений  $\approx 10^5$ , что дает практическое равенство  $N_-$  и  $N_+$ . В этом смысле интересными

<sup>1</sup> Именно этот момент представляется нам наиболее важным проявлением рассматриваемого механизма релаксации.

были бы опыты в сильном внешнем магнитном поле при резонансом оптическом возбуждении в  $2\bar{A}$ -состояние, когда высокочастотных фононов не образуется.

При сравнении с опытами по пленению фононов  $29 \text{ см}^{-1}$  в сильном магнитном поле [4] мы воспользовались следующей формулой для фактора пленения  $M$ , который определяет степень пленения и время пленения:

$$M = 0.1L^2k_0^2 \frac{\Gamma(-)\Gamma(+)}{\Gamma^2} \frac{\lambda_- \nu_+^2 + \lambda_+ \nu_-^2}{\lambda_+ + \lambda_-}, \quad (9)$$

где все обозначения соответствуют работе [12] по теории компенсированной диффузии фононов  $29 \text{ см}^{-1}$ , в частности  $N_-/N_+ = \nu_-/\nu_+$ . Отметим, что расчетные данные на рисунке в широком интервале изменения интенсивности накачки получены на основе гораздо более детальной теории, чем представленная в данной работе.<sup>2</sup> Небольшое количественное расхождение с опытом объясняется, по-видимому, слишком грубым описанием кинетики стоксовских релаксационных фононов.

Мы не останавливаемся здесь на критическом разборе теоретических воззрений авторов работы [3], основанных на работе [13], так как эти воззрения, с современной точки зрения, являются физически непоследовательными. Напомним, что корректная постановка задачи по спиновой резонансной релаксации была дана лишь в 1982 г. в работе [7].

Отметим в заключение, что в нестационарных импульсных опытах, а также в опытах квазистационарного типа [11] вероятности  $W_{+-}$  в (5) должны проявиться на опыте, так как соотношения (4) более не выполняются. При этом можно ожидать немонотонной зависимости от времени для отношения концентраций  $N_-/N_+$ .

Авторы признательны А. А. Каплянскому, В. И. Перелю за полезные замечания и интерес к работе. Мы также благодарны И. Б. Левинсону, обратившему наше внимание на общий интерес ситуации, в которой две динамические подсистемы сильно связаны между собой при их относительно слабом взаимодействии с термостатом.

#### Л и т е р а т у р а

- [1] Kaplyanskii A. A., Basun S. A. In: Nonequilibrium Phonons in Nonmetallic Crystals / Ed. Eisenmenger W., Kaplyanskii A. Elsevier Science Publishers B. V., 1986, p. 373—453.
- [2] Renk K. F. Ibid., p. 317—372.
- [3] Dijkhuis J. I., de Wijn H. W. Phys. Rev., 1979, vol. 20B, N 9, p. 3615—3618.
- [4] Басун С. А., Каплянский А. А., Шехтман В. Л. ФТТ. 1981. т. 23. № 12, с. 3694—3697.
- [5] Geschwind S., Devlin G. E., Cohen R. L., Chinn S. R. Phys. Rev., 1965. vol. 137A, N 4, p. 1087—1100.
- [6] Imbusch G. F., Geschwind S. Phys. Rev. Lett., 1966. vol. 17, N 5. p. 238—240.
- [7] Басун С. А., Каплянский А. А., Шехтман В. Л. ЖЭТФ, 1982, т. 82. № 6, с. 1945—1963.
- [8] Левинсон И. Б. ЖЭТФ, 1978. т. 85. № 1. с. 234—248.
- [9] Малышев В. А., Шехтман В. Л. ФТТ. 1984. т. 26. № 4, с. 1017—1026.
- [10] De Wijn H. W., Adde R. Sol. St. Commun., 1978, vol. 27, N 12. p. 1285—1288.
- [11] Басун С. А., Каплянский А. А., Шехтман В. Л. ФТТ, 1982, т. 24. № 6, с. 1913—1916.
- [12] Шехтман В. Л., Якубов А. Ф. ФТТ, 1988. т. 30, № 7. с. 1970—1978.
- [13] Dijkhuis J. I., de Wijn H. W. Phys. Rev., 1979, vol. 20B. N 5, p. 1844—1854.

Ленинградское высшее военно-морское инженерное училище им. В. И. Ленина  
Ленинград

Поступило в Редакцию  
23 мая 1988 г.  
В окончательной редакции  
8 июля 1988 г.

<sup>2</sup> В данной работе, так же как и в [12], мы существенно опирались на адиабатическое приближение [9]. Поэтому мы сочли желательным еще раз вернуться к результатам [9] и получили с помощью метода Фурье точную асимптотику степени пленения при больших значениях  $Lk_0$ . Оказалось, что результаты [9] отличаются от точного решения лишь численным коэффициентом, причем не более чем на 6 % (в режиме спектральной диффузии). Это сравнимо с погрешностью эксперимента. В этом смысле результаты данной работы, так же как и предшествующей [12], полностью обоснованы.