## Фазовая релаксация в неупорядоченных ядерных парамагнетиках

 $\Phi$ . С. Джепаров<sup>\*1)</sup>, Д. В. Львов, М. А. Веретенников<sup>+</sup>

Институт теоретической и экспериментальной физики им. Алиханова, 117218 Москва, Россия

Национальный исследовательский ядерный университет "МИФИ", 115409 Москва, Россия

+Институт радиотехники и электроники им. Котельникова РАН, 125009 Москва, Россия

\* Московский физико-технический институт, 141700 Долгопрудный, Россия

Поступила в редакцию 29 июля 2013 г.

Развит новый метод построения основных корреляционных функций ядерных парамагнетиков. Он объединяет проекционную технику и кумулянтные разложения. Этот метод дает удовлетворительные результаты для сигнала свободной индукции (ССИ) и функции формы линии резонанса ( $\Phi\Phi\Pi$ ) в магнитоконцентрированных кристаллах. Проведен учет переноса поляризации в магниторазбавленных кристаллах. Показано, что он приводит к существенному замедлению спада ССИ при временах, больших времени фазовой релаксации  $T_2$ . При этом сам ССИ остается в основном монотонным, в отличие от магнитоконцентрированных кристаллов, где ССИ осциллирует. Проведено сравнение результатов с существующими экспериментальными данными.

DOI: 10.7868/S0370274X13200101

Сигнал свободной индукции F(t) и форма линии резонанса  $G(\omega)$  принадлежат к основным измеримым величинам в ядерном магнитном резонансе (ЯМР) [1–3]. Обычно энергия взаимодействия одного спина с магнитным полем  $\mathbf{H}_0 = (0, 0, H_0)$  спектрометра много меньше температуры. При этом

$$F(t) = \frac{\langle I_{-}I_{+}(t)\rangle_{0}}{\langle I_{-}I_{+}\rangle_{0}} = \int_{-\infty}^{\infty} d\omega G(\omega) e^{-i\omega t}, \quad (1)$$

где использованы стандартные обозначения для спиновых операторов,  $I_+ = I_x + iI_y = \sum_{\mathbf{r}} n_{\mathbf{r}} I_{\mathbf{r}}^+$  и  $I_- = (I_+)^+$ . Здесь  $n_{\mathbf{r}}$  – не зависящее от времени число заполнения узла решетки **r** спином  $\mathbf{I_r}$  ( $n_{\mathbf{r}} = (0)1$ , если узел **r** (не)заполнен спином) [4, 5]. Квантовостатистическое среднее  $\langle A \rangle_0 = \text{Tr}\{A\}/\text{Tr}\{1\}$  вычисляется при бесконечной температуре. Эволюция  $I_+(t) =$  $= \exp(iH_dt)I_+ \exp(-iH_dt)$  определяется секулярной частью диполь-дипольных взаимодействий:

$$H_d = \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{rq}} n_{\mathbf{r}} n_{\mathbf{q}} b_{\mathbf{rq}} \left[ 2I_{\mathbf{r}}^z I_{\mathbf{q}}^z - \beta_{\mathbf{rq}} \left( I_{\mathbf{r}}^x I_{\mathbf{q}}^x + I_{\mathbf{r}}^y I_{\mathbf{q}}^y \right) \right], \quad (2)$$

$$b_{\mathbf{r}\neq\mathbf{q}} = \frac{\gamma_{\mathbf{r}}\gamma_{\mathbf{q}}\hbar}{2|\mathbf{r}-\mathbf{q}|^3} \left(1 - 3\cos^2\vartheta_{\mathbf{r}\mathbf{q}}\right), \quad b_{\mathbf{r}\mathbf{r}} = 0, \qquad (3)$$

где  $\vartheta_{\mathbf{rq}}$  – угол между  $\mathbf{r}-\mathbf{q}$  и внешним полем  $\mathbf{H}_0$ , а коэффициент  $\beta_{\mathbf{rq}} = 1$ , если гиромагнитные отношения спинов совпадают, т.е.  $\gamma_{\mathbf{r}} = \gamma_{\mathbf{q}}$ , и  $\beta_{\mathbf{rq}} = 0$  при  $|\gamma_{\mathbf{r}} - \gamma_{\mathbf{q}}| \sim |\gamma_{\mathbf{r}}|$ .

Далее основными являются системы, в которых  $I_{\mathbf{r}} = 1/2$ , а  $\gamma_{\mathbf{r}}$  одинаковы, т.е.  $\beta_{\mathbf{rq}} = 1$ . Системы, в которых некоторые  $\beta_{\mathbf{rq}} = 0$ , будут использованы для вспомогательных построений.

Соотношения (1)–(3) могут рассматриваться как базовые и для электронного парамагнитного резонанса (ЭПР). Вместе с тем в целом в ЭПР реализуются гораздо более разнообразные гамильтонианы.

Мы рассматриваем большие трансляционно инвариантные в среднем образцы, для которых

$$\langle I_{-}I_{+}(t)\rangle_{0} = \sum_{\mathbf{q}} F_{\mathbf{qr}}(t),$$
 (4)

$$F_{\mathbf{qr}}(t) = \langle n_{\mathbf{q}} n_{\mathbf{r}} \langle I_{\mathbf{q}}^{-} I_{\mathbf{r}}^{+}(t) \rangle_{0} \rangle_{c} \cdot \left( c \langle I_{\mathbf{r}}^{-} I_{\mathbf{r}}^{+} \rangle_{0} \right)^{-1}.$$

Здесь  $\langle \cdots \rangle_c$  – усреднение по распределению спинов в образце (т.е. по числам заполнения при заданном значении концентрации  $n_{\mathbf{r}} = c$ ). Эволюция корреляторов  $F_{\mathbf{qr}}(t)$  обычно называется фазовой релаксацией. Перенос намагниченности (поляризации) существует только при  $\beta_{\mathbf{rq}} \neq 0$ . Он выражается в том, что корреляторы  $F_{\mathbf{q}\neq\mathbf{r}}(t)$  со временем становятся отличными от нуля.

Основной временной масштаб далее задается временем фазовой релаксации  $T_2 = \int_0^\infty dt F(t).$ 

Мы различаем магнитоконцентрированные (плотные) и магниторазбавленные спиновые системы.

Магнитоконцентрированные ядерные парамагнетики диамагнитны по электронным степеням свободы, а их спины расставлены в кристаллическую решетку (или подрешетку). В магниторазбавленном ве-

<sup>&</sup>lt;sup>1)</sup>e-mail: dzheparov@itep.ru

ществе ядерные или электронные спины случайно разбросаны по узлам решетки, а концентрация занятых спинами узлов  $c \ll 1$ . Примеры магнитоконцентрированных систем: спины <sup>19</sup>F в кристалле CaF<sub>2</sub> и спины <sup>19</sup>F и <sup>7</sup>Li в кристалле LiF. Образцовой ядерной магниторазбавленной системой являются спины <sup>29</sup>Si в монокристалле кремния (естественная концентрация c = 4.67%). Электронные магниторазбавленные системы обычно образованы парамагнитными примесями в диамагнитном кристалле. В дальнейшем мы ограничимся случаем, когда распределение пространственных положений спинов в магниторазбавленных системах не коррелировано.

Микроскопический расчет сигнала свободной индукции является сложной и далеко не завершенной проблемой статистической физики, поскольку задача не принадлежит ни к точнорешаемым, ни к близким к ним. В настоящее время исследования магнитоконцентрированных и магниторазбавленных веществ находятся на совершенно разных уровнях.

Для магнитоконцентрированных систем образцовым является измерение сигнала свободной индукции (ССИ) [6] в CaF<sub>2</sub> в диапазоне изменения до уровня  $10^{-3}$  от значения в вершине (при t = 0). Важной особенностью ССИ является наличие осцилляций, удовлетворительно передаваемых соотношением [6]

$$F(t) \approx \frac{b}{a} \frac{\sin at}{\sin bt},\tag{5}$$

параметры которого  $a \sim b \sim 1/T_2$  могут быть определены по так называемым второму  $(M_2 = -d^2F(t = 0)/dt^2)$  и четвертому  $(M_4 = d^4F(t=0)/dt^4)$  моментам. Современное состояние теоретических исследований сигнала свободной индукции в магнитоконцентрированных средах представлено в работах [7, 8]. Они базируются на точном вычислении первых моментов и использовании их в каком-либо из общих подходов теории многих тел, например в проекционной технике Накаджима–Цванцига, через введение модельных предположений о функции памяти [2, 8] или в разложениях по обратной размерности пространства [7].

Измерения, которые можно было бы использовать как опорные для построения теории ядерных магниторазбавленных систем, до сих пор отсутствуют. Это обусловлено как малым отношением сигнал/шум для таких систем, так и трудностями достаточно быстрого получения однородной поляризации в них, без которой невозможно адекватное измерение. Далее этот вопрос будет рассмотрен подробнее. В ЭПР, в отличие от ЯМР, отношение сигнал/шум обычно вполне удовлетворительно, но реальные гамильтонианы взаимодействий, как правило, заметно отличаются от (2), (3). В итоге нам не известны такие измерения ССИ или функции формы линии резонанса (ФФЛ) электронных парамагнетиков, которые можно было бы использовать как эталон для сравнения теории и эксперимента. Экспериментаторы в лучшем случае применяют формулы Андерсона–Абрагама [1], полученные для формы линии или огибающей спинового эха в рамках точно решаемой модели, не содержащей переноса поляризации (в ней  $\beta_{rq} \equiv 0$ ).

Современная теория ССИ в магниторазбавленных средах [5, 9] основывается на точно решаемой модели Андерсона-Абрагама [1], на концентрационных разложениях [10, 4, 5], которые позволяют вычислить первые члены разложения ССИ в ряд по концентрации, и использовании их вместо моментов в общих методах теории многих тел. Существенно, что в пределе малых концентраций, когда выявляются основные свойства теории, разложение происходит по параметру c|t|, а моменты становятся бесконечными. В работах [5, 9] было предложено обобщение кумулянтного разложения, которое учитывало все существующие в этой области знания. Вместе с тем в целом метод построения оказался совершенно отличным от используемых в магнитоконцентрированных средах. В результате был получен ССИ, который в основном (т.е. на масштабе  $T_2$ ), монотонно убывает со временем в противоположность осциллирующему ССИ для магнитоупорядоченных сред. В отсутствие экспериментальных данных остается неясным, отражает этот факт реальность или только разницу в примененном теоретическом аппарате и трудности теории неупорядоченных систем. Данный вопрос обострился с проведением в работах [11, 12] численного моделирования на 8 и 7 спиновых магниторазбавленных моделях, в результате которого получаются некоторые указания на возникновение осцилляций.

В настоящей работе развит новый метод расчета ССИ и  $\Phi\Phi Л$ , в котором описание магнитоконцентрированных и магниторазбавленных сред по возможности унифицировано. Его особенностью являются последовательный учет переноса намагниченности в процессе фазовой релаксации и использование того факта, что форма линии ЯМР для примесных спинов в магнитоконцентрированном кристалле в интервале до  $10^{-4}-10^{-5}$  от значения в вершине (при  $\omega = 0$ ) удовлетворительно описывается предложенной в [13, 14] модификацией модели Андерсона– Вейсса–Кубо. В последней локальное поле на примесном спине аппроксимируется нормальным слу-

Письма в ЖЭТФ том 98 вып. 7-8 2013

ся

чайным процессом. Основы метода ранее были аннотированы в [15].

1. Основные кинетические уравнения. Для расчета коррелятора  $F_{\mathbf{rq}}(t)$  рассмотрим уравнение движения

$$\frac{d}{dt}n_{\mathbf{r}}I_{\mathbf{r}}^{+}(t) = i\left[H_{d}, n_{\mathbf{r}}I_{\mathbf{r}}^{+}(t)\right] = iH_{d}^{\times}n_{\mathbf{r}}I_{\mathbf{r}}^{+}(t).$$
(6)

Введенный здесь супероператор  $H_d^{\times}$  действует в гильбертовом пространстве, натянутом на обычные операторы квантовой механики [2, 16] со скалярным произведением  $(A|B) = \langle A^+B \rangle_0$ .

Введем проекционный (супер)оператор

$$PQ = \sum_{\mathbf{q}} n_{\mathbf{q}} I_{\mathbf{q}}^{+} \langle n_{\mathbf{q}} I_{\mathbf{q}}^{-} Q \rangle \left( c \langle I_{\mathbf{q}}^{-} I_{\mathbf{q}}^{+} \rangle \right)^{-1}, \qquad (7)$$

где Q – произвольный оператор. Применяя его и стандартные преобразования [2, 16] к уравнению (6), приходим к основному кинетическому уравнению:

$$\frac{d}{dt}F_{\mathbf{rq}}(t) = -\int_0^t d\tau \sum_{\mathbf{x}} M_{\mathbf{rx}}(\tau)F_{\mathbf{xq}}(t-\tau), \qquad (8)$$

$$M_{\mathbf{rx}}(\tau) = \frac{\left\langle \left[n_{\mathbf{r}}I_{\mathbf{r}}^{-}, H_{d}\right] e^{i\overline{P}H_{d}^{\times}\overline{P}\tau} \left[H_{d}, n_{\mathbf{x}}I_{\mathbf{x}}^{+}\right]\right\rangle}{c\left\langle I_{\mathbf{x}}^{-}I_{\mathbf{x}}^{+}\right\rangle}.$$
 (9)

Здесь  $\overline{P} = 1 - P$  и учтено, что  $\overline{P}[H_d, I_{\mathbf{x}}^+] = [H_d, I_{\mathbf{x}}^+]$ и  $\langle [I_{\mathbf{r}}^-, H_d] \overline{P} Q \rangle_0 = \langle [I_{\mathbf{r}}^-, H_d] Q \rangle_0$ .

Из основных определений (1) и (4) следует, что ССИ F(t) можно получить и как решение уравнения

$$\frac{d}{dt}F(t) = -\int_0^t d\tau M(\tau)F(t-\tau),$$
(10)

$$M(\tau) = \sum_{\mathbf{r}} M_{\mathbf{rx}}(\tau).$$
(11)

**2.** Магнитоконцентрированные кристаллы. Ядро памяти  $M_{\mathbf{rx}}(\tau)$  является самым сложным объектом теории. Применим для его расчета в плотных системах, где  $n_{\mathbf{q}} \equiv 1$ , следующую простую и естественную аппроксимацию:

$$M_{\mathbf{rx}}(\tau) = m_{\mathbf{rx}}\chi(\tau), \quad m_{\mathbf{rx}} = M_{\mathbf{rx}}(0).$$
(12)

Здесь значение  $m_{\mathbf{rx}} = \frac{I(I+1)}{3} \left( 5\delta_{\mathbf{rx}} \sum_{\mathbf{q}} b_{\mathbf{qr}}^2 + 4b_{\mathbf{rx}}^2 \right)$ легко вычислимо, а  $\chi(\tau)$  пока остается неизвестной функцией с условием  $\chi(0) = 1$ .

Для определения функции  $\chi(t)$  возьмем вспомогательную систему, отличающуюся от основной только тем, что один спин, расположенный в  $\mathbf{r} = \mathbf{0}$ , не имеет флип-флоп взаимодействия с окружением (т.е.  $\beta_{0\mathbf{r}} = \mathbf{0}$ ). Рассмотрим для него сигнал свободной индукции

$$F_{I}(t) = F_{00}(t) = \langle I_{\mathbf{0}}^{-} I_{\mathbf{0}}^{+}(t) \rangle_{0} / \langle I_{\mathbf{0}}^{-} I_{\mathbf{0}}^{+} \rangle_{0}.$$
(13)

**9** Письма в ЖЭТФ том 98 вып. 7-8 2013

В данном случае уравнение на  $F_I(t)$  отделяется от уравнений на остальные  $F_{\mathbf{rq}}$  в (8). В итоге получает-

$$\frac{d}{dt}F_I(t) = -\int_0^t d\tau M_I(\tau)F_I(t-\tau),\qquad(14)$$

где  $M_I(\tau) = M_{00}(\tau)$ . Как и в (12), примем, что  $M_I(\tau) = m_I \chi_I(\tau)$ . При этом

$$m_I = M_I(0) = \frac{4I(I+1)}{3} \sum_{\mathbf{q}} b_{\mathbf{q}0}^2 = \frac{4}{9} M(0).$$
(15)

Функция  $\chi_I(\tau)$  не совпадает с  $\chi(\tau)$ . Однако естественно ожидать, что их различие невелико (порядка  $1/z_e$ , где  $z_e \sim 10$  – эффективное число соседей у каждого спина). Поэтому далее мы положим  $\chi_I(\tau) = \chi(\tau)$  и, как следствие,

$$M(\tau) = 9/4 \cdot M_I(\tau). \tag{16}$$

Лишь численно несколько отличающиеся от  $F_I(t)$ корреляторы описывают ССИ и ФФЛ для примесных ядер в таких же кристаллах. Как показано в [13, 14], их можно адекватно вычислить, пренебрегая влиянием примесного спина на кристалл, на основе развитого в этих работах обобщения теории Андерсона–Вейсса–Кубо, в котором

$$F_I(t) = \exp\left[-m_I \int_0^t d\tau (t-\tau)\varkappa(\tau)\right], \qquad (17)$$

$$\begin{aligned} \varkappa(\tau) &= \sum_{\mathbf{q}\mathbf{y}} b_{\mathbf{q}\mathbf{0}} b_{\mathbf{y}\mathbf{0}} F^{z}_{\mathbf{q}\mathbf{y}}(\tau) / \sum_{\mathbf{q}} b^{2}_{\mathbf{q}\mathbf{0}}, \qquad (18) \\ F^{z}_{\mathbf{q}\mathbf{y}}(\tau) &= \langle I^{z}_{\mathbf{q}} I^{z}_{\mathbf{y}}(\tau) \rangle_{0} / \langle \left(I^{z}_{\mathbf{y}}\right)^{2} \rangle_{0}. \end{aligned}$$

Напомним, что для примесного спина существует решение уравнения (6) в форме

$$n_0 I_0^+(t) = n_0 T e^{i \int_0^t d\tau \hat{\omega}_0(\tau)} I_0^+, \quad \hat{\omega}_0 = 2 \sum_{\mathbf{q}} n_{\mathbf{q}} b_{\mathbf{q}0} I_{\mathbf{q}}^z.$$
(19)

Представление (17) получается отсюда (при  $n_{\mathbf{q}} = 1$ ), например, на основе следующих аппроксимаций:

$$F_{I}(t) = \langle T e^{i \int_{0}^{t} d\tau \hat{\omega}_{0}(\tau)} I_{0}^{+} I_{0}^{-} \rangle_{0} / \langle I_{0}^{+} I_{0}^{-} \rangle_{0} \rightarrow$$
$$\rightarrow \langle T e^{i \int_{0}^{t} d\tau \hat{\omega}_{0}(\tau)} \rangle_{0} \rightarrow e^{-m_{I} \int_{0}^{t} d\tau (t-\tau) \varkappa(\tau)}.$$
(20)

Здесь в первом приближенном соотношении пренебрегается влиянием примесного спина на зависимость  $\hat{\omega}_0(\tau)$ , а во втором удержан главный член кумулянтного разложения по  $\hat{\omega}_0(\tau)$ .

Полученные уравнения позволяют рассчитать F(t) по известному  $F_I(t)$ . Из уравнения (14) по  $F_I(t)$  вычисляется  $M_I(\tau)$ . Далее с помощью уравнений (10), (11) определяется F(t). Формула (17) дает монотонно затухающий  $F_I(t)$  примесного спина.



Рис. 1. ССИ для кристалла, вычисленный на основе уравнений (14)–(17), (10) и (11) (линия 2), в сравнении с формулой (5) (линия 1). Здесь  $M_4/M_2^2 = 19/9$ , а  $\omega_{\rm loc} = \sqrt{M_2}$ . При использовании трех вариантов,  $\varkappa(t) = \exp\left[-(\omega_{\rm loc}t)^2/4\right]$ ,  $1/\cosh(\omega_{\rm loc}t/\sqrt{2})$  и  $1/\left[1 + (\omega_{\rm loc}t)^2/3\right]^{-3/4}$ , результаты для F(t) совпадают в пределах толщины линии 2

При этом ССИ F(t) проявляет хорошо выраженные осцилляции, представленные на рис. 1. Такие осцилляции существуют при любых разумных аппроксимациях для функции  $\varkappa(\tau)$ . Согласие найденного F(t) с формулой (5) оказывается лучше, чем получающееся при применении гауссовой функции памяти в методе, описанном в [2] и представленном там на рис. 1.1 для функции формы линии.

Уравнения (10) и (14) одинаковы по структуре. Они отличаются только коэффициентом 9/4 в формуле (16), который и представляет влияние переноса поперечной поляризации.

Отметим также связь между функцией формы линии  $G(\omega)$  и преобразованием Фурье–Лапласа от  $F_I(t)$ . Если ввести функцию

$$g(\varepsilon + i\omega) = \int_0^\infty dt e^{-(\varepsilon + i\omega)t} F_I(t) = g_c(\omega) - ig_s(\omega), \quad (21)$$

где  $\varepsilon \to +0$ , а  $g_c(\omega)$  и  $g_s(\omega)$  действительны, то

$$G(\omega) = \frac{36}{25\pi} \frac{g_c(\omega)}{[\omega g_s(\omega) - 9/5]^2 + [\omega g_c(\omega)]^2}.$$
 (22)

Из (22) видно, что высокочастотная асимптотика

$$G(\omega \to \infty) = 9/(4\pi) \cdot g_c(\omega)$$

**3. Магниторазбавленные среды.** Основная исходная информация для построения ССИ в магниторазбавленной системе состоит в том, что в пределе малых концентраций [5]

$$F(t) = 1 - D_A |t| + 5/9 \cdot (D_A t)^2 + O[(D_A |t|)^3], \quad (23)$$

$$D_A = 2\pi^2 \gamma^2 \hbar n / (3\sqrt{3}). \tag{24}$$

Здесь  $n = c/\Omega$  – число спинов в единице объема,  $\Omega$  – объем на один узел кристалла, а коэффициент 5/9 в (23) получен округлением приведенного в [5] выражения  $1/2 \cdot 1.11$ .

Для обобщения конструкции предыдущего пункта на магниторазбавленные системы мы должны найти замену соотношениям (12), (15) и (17), поскольку в главном приближении вторые моменты становятся бесконечными. Удобно применить лаплас-представление и заменить соотношения (12) и (15) на

$$M_{\mathbf{rx}}(\lambda) = \int_0^\infty d\tau e^{\lambda\tau} M_{\mathbf{rx}}(\tau) = m_{\mathbf{rx}}(\lambda)\sigma(\lambda), \quad (25)$$

$$M_I(\lambda) = m_I(\lambda)\sigma_I(\lambda).$$
(26)

Здесь и далее для лаплас-образа и прообраза используется один и тот же символ, а различаются они аргументами  $(t, \tau$ или  $\lambda$ соответственно). Функции  $m_{\mathbf{rx}}(\lambda)$  и  $m_I(\lambda)$  в (25) и (26) содержат только главные по концентрации c члены, т.е.

$$\sigma(\lambda) = 1 + \mu(c, \lambda), \quad \sigma_I(\lambda) = 1 + \mu_I(c, \lambda).$$
(27)

При этом при  $c \to 0$  как  $\mu(c, \lambda) \propto c^1$ , так <br/>и $\mu_I(c, \lambda) \propto \propto c^1$ .

Как и выше, положим  $\sigma_I(\lambda) = \sigma(\lambda)$ , опираясь на то, что благодаря дипольному дальнодействию эффективное число ближайших соседей  $z_e$  в рассматриваемой системе не мало. Действительно, в вышеуказанном варианте модели Андерсона–Абрагама  $z_e = B/\bar{\omega} = 6.6$ . Здесь  $B = 2/3 \cdot D_A$  – ширина линии резонанса в этой модели, а  $\bar{\omega}$  – среднее по ориентациям от модуля поля, создаваемого одним спином на другом, удаленном от него на среднее расстояние  $\bar{r} = n^{-1/3}$ .

Для построения вспомогательного ССИ  $F_I(t)$  перепишем (20) как

$$F_I(t) = \langle \langle T e^{i \int_0^t d\tau \hat{\omega}_0(\tau)} \rangle_0 \rangle_c \to \langle e^{-m_I \int_0^t d\tau (t-\tau) \varkappa(\tau)} \rangle_c,$$
(28)

где  $m_I = 4I(I+1)/3 \cdot \sum_{\mathbf{q}} n_{\mathbf{q}} b_{\mathbf{q}0}^2$  и, как и ранее,  $\varkappa(\tau=0)=1.$ 

В важном частном случае, когда  $\hat{\omega}_0(\tau)$  не зависит от  $\tau$ ,  $F_I(t)$  совпадает с результатом модели Андерсона–Абрагама:

$$F_I(t) = F_A(t) = \prod_{\mathbf{q}} \langle \cos\left(n_{\mathbf{q}} b_{\mathbf{q}0} t\right) \rangle_c, \qquad (29)$$

и, при  $c \ll 1$ ,

$$F_A(t) = \exp\left[-c\sum_{\mathbf{q}} (1 - \cos b_{\mathbf{q}0}t)\right] \to \exp(-B|t|).$$
(30)

Письма в ЖЭТФ том 98 вып. 7-8 2013

Здесь в конце взят предел  $c \to 0$  при  $\sum_{\mathbf{q}} \to \int d^3 q / \Omega$ . Более точные соотношения приведены в [4, 9]. При применении к этому случаю формулы (28) (с учетом  $\varkappa(t) \equiv 1$ ) получаем  $F_A(t) \to \exp(-0.8B|t|)$  [17]. Таким образом, данная простая аппроксимация работает удивительно точно.

Если пренебречь только зависимостью  $\varkappa(\tau)$ от чисел заполнения, то из (28) следует  $F_I(t) \rightarrow \rightarrow \exp\left\{-0.8\left[2B^2\int_0^t d\tau(t-\tau)\varkappa(\tau)\right]^{1/2}\right\}$ . Поэтому мы получим качественно правильное представление для процесса, приняв

$$F_I(t) = e^{-[2B^2 \int_0^t d\tau (t-\tau) \exp(-\alpha B | \tau)]^{1/2}}, \qquad (31)$$

где  $\alpha$  – некоторая константа. В (31)  $\varkappa(\tau) = \exp(-\alpha B|\tau|)$  (что соответствует гауссовому варианту для  $\varkappa(\tau)$  в (20) для плотных систем) использует простейшую функцию, которая представляет влияние флип-флоп движений в окружающих спинах и совместна с аналитической структурой концентрационного разложения (23).

Как и ранее, ССИ F(t) удовлетворяет уравнению (10). Сравнение первых членов концентрационных разложений для  $F_I(t)$  и F(t) показывает, что  $m(\lambda) = D_A, m_I(\lambda) = B = 2/3 \cdot D_A, \alpha = 1/2$  и

$$M(\tau) = 3/2 \cdot M_I(\tau). \tag{32}$$

В результате связь между преобразованием Фурье– Лапласа (21) функции  $F_I(t)$  и  $\Phi\Phi\Pi G(\omega)$  приобретает вид

$$G(\omega) = \frac{6}{\pi} \frac{g_c(\omega)}{\left[\omega g_s(\omega) - 3\right]^2 + \left[\omega g_c(\omega)\right]^2}.$$
 (33)

Их рис. 2 видно, что расчет по этим формулам не дает осцилляций на масштабе  $T_2 \sim 1/D_A$ : ССИ монотонно убывает. Новый результат совпадает со старыми предсказаниями вплоть до членов  $\sim (D_A t)^2$ . Поэтому их различие заметно проявляется только при  $D_A t > 1$ .

Анализ показывает, что  $F(t) \approx \Phi(t)$ , где

$$\Phi(t) = \frac{2F_I(t)}{5} \left\{ 1 + \frac{3F_I^{5/6}(t)}{2} - \frac{5(1 - F_I(t))^2}{12} \right\}.$$
 (34)

При этом при  $0 \le Bt = 2D_A t/3 < 3.2$  и  $F_I(t) > 1/30$  относительная погрешность не превосходит 1%. Далее она монотонно возрастает со временем и достигает 10% при Bt = 5 и 25% при Bt = 10.

Предел малых концентраций, в котором  $c \to 0$ , но  $D_A t \sim 1$ , является, по существу, пределом сплошной среды, поскольку информация о структуре кри-





Рис. 2. Результаты расчета сигнала свободной индукции F(t) (линия 1) для магниторазбавленной системы на основе уравнений (14), (10), (31) и (32). Остальные линии: 2 – вспомогательный ССИ  $F_I(t)$ , 3 – ССИ из работ [5, 9], где формула типа (32) была применена непосредственно к F(t), 4 – ССИ для кристалла кремния при c = 0.0467 и **H**||[111]

сталла в этом пределе пропадает. Для ее восстановления достаточно заменить в наших результатах (например, в (34))  $D_A|t|$  выражением, из которого оно получено [5], проведя замену

$$|t| \to t_e(t) = c/D_A \sum_{\mathbf{q}} \left[1 - \cos\left(3/2 \cdot b_{\mathbf{q}0}t\right)\right].$$
 (35)

Здесь, как и в (30), равенство  $|t| = t_e(t)$  восстанавливается при замене суммы по **q** на интеграл. Различие между линиями 1 и 4 на рис. 2 показывает, насколько велико влияние на ССИ структуры кристалла при естественной концентрации изотопа <sup>29</sup>Si в монокристалле кремния. Соответственно для ФФЛ получаем

$$G(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dt}{2\pi} e^{i\omega t} \Phi[t_e(t)].$$
(36)

4. Сравнение с экспериментом. Экспериментальных данных, пригодных для прямого сравнения с нашей теорией в трехмерных системах, в настоящее время нет. Во всех проведенных измерениях было существенно уширение, вызванное посторонними взаимодействиями. Тем не менее мы выделяем работы [11, 12, 18–20], сравнение с которыми возможно на относительно безмодельной основе. Все они выполнены на ядрах <sup>29</sup>Si в кремнии.

На fig. 3 в [11] приведен ССИ для порошка кремния, полученный методом спинового эха Хана. Он удовлетворительно описывается первой из формул (30) после дополнительного усреднения по ориентациям кристаллитов. Авторы [11], по-видимому, не знали этих формул и использовали численное моделирование, стартуя с соотношения (29). Данный результат соответствует лишнему коэффициенту 2/3 в члене ~  $D_a|t|$  в (23). Он показывает, что использованные образцы не годились для изучения чисто дипольной динамики. Действительно, в [21] выявлено, что в образцах с таким уровнем допирования ширина линии определяется неоднородным сдвигом Найта. Оценки показывают, что при этом изменение сдвига Найта на ядрах <sup>29</sup>Si, разделенных средним расстоянием  $\bar{r}$ , существенно превосходит ожидаемую дипольную ширину линии  $D_A(c = 0.0467) = 2\pi \cdot 42.1 \, \Gamma$ ц. Поэтому флип-флоп член гамильтониана (2) должен быть опущен, что и объясняет вышеуказанные 2/3.

В работе [20] проведены измерения на монокристаллах при трех значениях концентрации ядер <sup>29</sup>Si (c = 0.012, 0.0467 и 0.103) при ориентации внешнего поля  $\mathbf{H}_0$  [[111]. Ее авторами предпринята попытка выделить чисто дипольный вклад в два измеримых параметра формы линии: полуширину на полувысоте  $\Delta_{1/2}$  и значение в вершине  $G(\omega = 0)$ . Они предположили, что источник дополнительного уширения одинаков для всех трех образцов, выявили, что оба параметра линейно зависят от с, и отнесли к дипольным их части, пропорциональные с. Мы провели более полный анализ результатов [20] на основе свертки чисто расчетной (без подгоночных параметров) функции (36) с уширяющей линией Фойгта, одинаковой для всех трех образцов и с значениями  $D_{\rm L} = 2\pi \cdot 7.6(4)$  Гц и  $D_{\rm G} = 2\pi \cdot 22.6(6)$  Гц ее лоренцевой и гауссовой компонент. При этом для центральных частей линий получилось удовлетворительное согласие. Однако экспериментальные положения и амплитуды сателлитных пиков, порождаемых взаимодействиями спинов на расстояниях, много меньших среднего  $\bar{r}$ , воспроизвелись заметно хуже.

Поэтому мы произвели аналогичную обработку результатов работ [18, 19] по форме линии резонанса в монокристаллических образцах с c = 0.0467 при трех ориентациях ([100], [110] и [111]) поля **H**<sub>0</sub>. Особое внимание в [18, 19] было уделено сателлитам. В них продекларировано, что получено удовлетворительное согласие с теорией. Согласие нашей теории и эксперимента [18, 19] по центральным частям линий также удовлетворительно. Согласие же их по сателлитам заметно лучше, чем с результатами [20]. Однако надо отметить, что при этом параметры линии Фойгта почти вдвое больше, чем в работе [20].

Отметим, что теоретические построения работ [18, 19], по существу, двухчастичны и автоматически воспроизводятся в наших формулах (29) и (36). Поэтому мы провели дополнительное сравнение нашей теории с результатом численного моделирования на шестиспиновой системе, представленного на fig. 17 в [11]. В итоге мы получили практическое совпадение по положению и амплитудам сателлитов. Это показало, что рецепт (35) достаточно точен. Причины расхождения теории и эксперимента остаются невыясненными. Для более определенных выводов необходимы новые измерения.

Благодарим за полезные обсуждения сотрудников общемосковского семинара "Проблемы магнитного резонанса". Работа выполнена при поддержке РФФИ (проект # 11-02-00880).

- 1. А. Абрагам, Ядерный магнетизм, М.: ИЛ, 1963.
- А. Абрагам, М. Гольдман, Ядерный магнетизм: порядок и беспорядок, М.: Мир 1984, т. 1–2.
- Р. Эрнст, Дж. Боденхаузен, А. Вокаун, *ЯМР в одном* и двух измерениях, М.: Мир 1990.
- Ф. С. Джепаров, А.А. Лундин, Т.Н. Хазанович, ЖЭТФ 92, 554 (1987).
- Ф. С. Джепаров, И. В. Каганов, Письма в ЖЭТФ 75, 309 (2002).
- M. Engelsberg and I.J. Lowe, Phys. Rev. B10, 822 (1974).
- 7. В.Е. Зобов, М.А. Попов, ЖЭТФ **127**, 877 (2005).
- В. Л. Боднева, А.А. Лундин, ЖЭТФ 135, 1142 (2009).
- F.S. Dzheparov, J. of Superconductivity and Novel Magnetism 20, 161 (2007).
- Ф. С. Джепаров, В. С. Смелов, В. Е. Шестопал, Письма в ЖЭТФ **32**, 51 (1980).
- D. Li, Y. Dong, R.G. Ramos et al., Phys. Rev. B 77, 214306 (2008).
- D. Li, Y. Dong, R. G. Ramos et al., ArXiv: 0704.3620 [cond-mat.mes-hall].
- М. И. Булгаков, А. Д. Гулько, Ф. С. Джепаров и др., Письма в ЖЭТФ 58, 614 (1993).
- Ю.Г. Абов, А.Д. Гулько, Ф.С. Джепаров и др., ЭЧАЯ 95, 1654 (1995).
- 15. F.S. Dzheparov, J. Phys. Conf. Ser. **324**, 012004 (2011).
- Д. Форстер, Гидродинамические флуктуации, нарушенная симметрия и корреляционные Функции, М.: Атомиздат, 1980.
- D. A. Drabolt and P. A. Fedders, Phys. Rev. B 37, 3440 (1988).
- A.S. Verhulst, D. Maryenko, Y. Yamamoto, and K.M. Itoh, Phys. Rev. B 68, 054105 (2003).
- 19. A.S. Verhulst, Optical Pumping Experiments to Increase the Polarization in nuclear-spin Based Quantum Computers, Thesis, Stanford University, 2004.
- H. Hayashi, K. M. Itoh, and L. S. Vlasenko, Phys. Rev. B 78, 153201 (2008).
- M. J. Hirsch and D. F. Holcomb, Phys. Rev. B 33, 2520 (1986).