Письма в ЖЭТФ, том 98, вып. 8, с. 543 – 548 © 2013 г. 25 октября

Фазовая релаксация в неупорядоченных ядерных парамагнетиках

Ф. С. Джепаров*[1)], Д. В. Львов, М. А. Веретенников+

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 (ФФЛ) 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

$$F(t) = \frac{\langle I_- I_+ (t)\rangle_0}{\langle I_- I_+\rangle_0} = \int_{-\infty}^{\infty} d\omega G(\omega) e^{-i\omega t}, \qquad (1)$$

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 $\mathbf{r}$ спином $\mathbf{I}_{\mathbf{r}}$ ($n_{\mathbf{r}} = (0)1$, если узел $\mathbf{r}$ (не)заполнен спином) [4, 5]. Квантовостатистическое среднее $\langle A\rangle_0 = \mathrm{Tr}\{A\}/\mathrm{Tr}\{1\}$ вычисляется при бесконечной температуре. Эволюция $I_+(t) = \exp(iH_d t) I_+ \exp(-iH_d t)$ определяется секулярной частью диполь-дипольных взаимодействий:

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

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

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

$$\langle I_- I_+(t)\rangle_0 = \sum\nolimits_{\mathbf{q}} F_{\mathbf{qr}}(t), \qquad (4)$$

$$F_{\mathbf{qr}}(t) = \langle n_{\mathbf{q}} n_{\mathbf{r}} \langle I_{\mathbf{q}}^- I_{\mathbf{r}}^+(t)\rangle_0\rangle_c \cdot \left(c\langle I_{\mathbf{r}}^- I_{\mathbf{r}}^+\rangle_0\right)^{-1}.$$

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-

[1)]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 ^{19}F в кристалле CaF_2 и спины ^{19}F и ^{7}Li в кристалле LiF. Образцовой ядерной магниторазбавленной системой являются спины ^{29}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_2 в диапазоне изменения до уровня 10^{-3} от значения в вершине (при $t = 0$). Важной особенностью ССИ является наличие осцилляций, удовлетворительно передаваемых соотношением [6]

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

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 $\beta_{\mathbf{rq}} \equiv 0$).

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 ФФЛ, 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 случайным процессом. Основы метода ранее были анонтированы в [15].

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

$$M(\tau)=\sum\nolimits_{\mathbf{r}}M_{\mathbf{rx}}(\tau). \qquad (11)$$

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:

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

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. $\beta_{0\mathbf{r}}=0$). Рассмотрим для него сигнал свободной индукции

$$F_I(t)=F_{00}(t)=\langle I_{\mathbf{0}}^{-}I_{\mathbf{0}}^{+}(t)\rangle_0/\langle I_{\mathbf{0}}^{-}I_{\mathbf{0}}^{+}\rangle_0. \qquad (13)$$

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

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

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

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

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,

$$M(\tau)=9/4\cdot M_I(\tau). \qquad (16)$$

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

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

$$\varkappa(\tau)=\sum\nolimits_{\mathbf{qy}}b_{\mathbf{q0}}b_{\mathbf{y0}}F_{\mathbf{qy}}^z(\tau)/\sum\nolimits_{\mathbf{q}}b_{\mathbf{q0}}^2, \qquad (18)$$

$$F_{\mathbf{qy}}^z(\tau)=\langle I_{\mathbf{q}}^zI_{\mathbf{y}}^z(\tau)\rangle_0/\langle\left(I_{\mathbf{y}}^z\right)^2\rangle_0.$$

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

$$n_0I_0^{+}(t)=n_0Te^{i\int_0^t d\tau\hat{\omega}_0(\tau)}I_0^{+}, \quad \hat{\omega}_0=2\sum\nolimits_{\mathbf{q}}n_{\mathbf{q}}b_{\mathbf{q}0}I_{\mathbf{q}}^z. \qquad (19)$$

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

$$F_I(t)=\langle Te^{i\int_0^t d\tau\hat{\omega}_0(\tau)}I_0^{+}I_0^{-}\rangle_0/\langle I_0^{+}I_0^{-}\rangle_0\to$$

$$\to\langle Te^{i\int_0^t d\tau\hat{\omega}_0(\tau)}\rangle_0\to e^{-m_I\int_0^t d\tau(t-\tau)\varkappa(\tau)}. \qquad (20)$$

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.

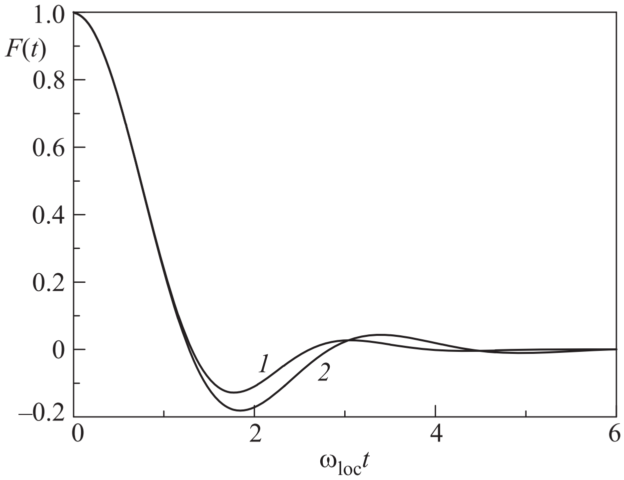

Рис. 1. ССИ для кристалла, вычисленный на основе уравнений (14)–(17), (10) и (11) (линия *2*), в сравнении с формулой (5) (линия *1*). Здесь $M_4/M_2^2 = 19/9$, а $\omega_{\rm loc} = \sqrt{M_2}$. При использовании трех вариантов, $\varkappa(t) = \exp\left[-(\omega_{\rm loc}t)^2/4\right]$, $1/\cosh(\omega_{\rm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

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

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

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

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]

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

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

Здесь $n = c/\Omega$ – число спинов в единице объема, Ω – 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

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

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

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

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

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

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

$$F_I(t) = \langle\langle Te^{i\int_0^t d\tau\hat\omega_0(\tau)}\rangle_0\rangle_c \to \langle e^{-m_I\int_0^t d\tau(t-\tau)\varkappa(\tau)}\rangle_c, \quad (28)$$

где $m_I = 4I(I+1)/3\cdot\sum_{\mathbf q}n_{\mathbf q}b_{\mathbf q0}^2$ и, как и ранее, $\varkappa(\tau=0)=1$.

В важном частном случае, когда $\hat\omega_0(\tau)$ не зависит от τ, $F_I(t)$ совпадает с результатом модели Андерсона–Абрагама:

$$F_I(t) = F_A(t) = \prod\nolimits_{\mathbf q}\langle\cos\left(n_{\mathbf q}b_{\mathbf q0}t\right)\rangle_c, \quad (29)$$

и, при $c\ll 1$,

$$F_A(t) = \exp\left[-c\sum\nolimits_{\mathbf q}(1-\cos b_{\mathbf q0}t)\right] \to \exp(-B|t|). \quad (30)$$

Здесь в конце взят предел $c \to 0$ при $\sum_{\mathbf{q}} \to \int d^3q/\Omega$. 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 $F_I(t) \to \to \exp\left\{-0.8\left[2B^2\int_0^t d\tau(t-\tau)\varkappa(\tau)\right]^{1/2}\right\}$. 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 α – 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

$$M(\tau) = 3/2 \cdot M_I(\tau). \qquad (32)$$

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

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

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 $\sim (D_At)^2$. Поэтому их различие заметно проявляется только при $D_At > 1$.

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

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

При этом при $0 \le Bt = 2D_At/3 < 3.2$ 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 $D_At \sim 1$, является, по существу, пределом сплошной среды, поскольку информация о структуре кристалла 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

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

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

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

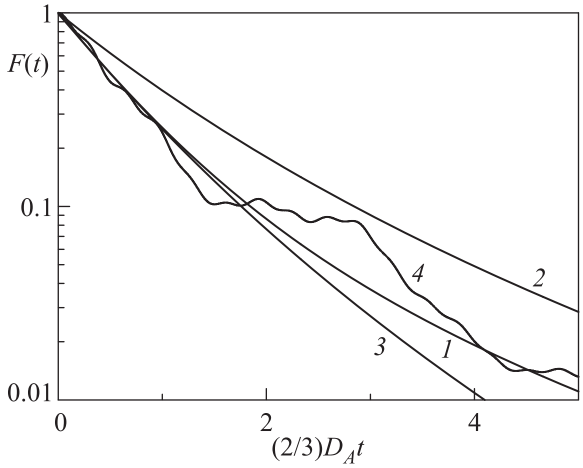

Рис. 2. Результаты расчета сигнала свободной индукции $F(t)$ (линия *1*) для магниторазбавленной системы на основе уравнений (14), (10), (31) и (32). Остальные линии: *2* – вспомогательный ССИ $F_I(t)$, *3* – ССИ из работ [5, 9], где формула типа (32) была применена непосредственно к $F(t)$, *4* – ССИ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

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 ^{29}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 $\sim D_a|t|$ 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 ^{29}Si, разделенных средним расстоянием $\bar{r}$, существенно превосходит ожидаемую дипольную ширину линии $D_A(c = 0.0467) = 2\pi \cdot 42.1$ Гц. 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 ^{29}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 c, и отнесли к дипольным их части, пропорциональные c. 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 $D_{\mathrm{L}} = 2\pi \cdot 7.6(4)$ Гц и $D_{\mathrm{G}} = 2\pi \cdot 22.6(6)$ 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 $\mathbf{H}_0$. 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.
2. А. Абрагам, М. Гольдман, *Ядерный магнетизм: порядок и беспорядок*, М.: Мир 1984, т. 1–2.
3. Р. Эрнст, Дж. Боденхаузен, А. Вокаун, *ЯМР в одном и двух измерениях*, М.: Мир 1990.
4. Ф. С. Джепаров, А. А. Лундин, Т. Н. Хазанович, ЖЭТФ **92**, 554 (1987).
5. Ф. С. Джепаров, И. В. Каганов, Письма в ЖЭТФ **75**, 309 (2002).
6. M. Engelsberg and I. J. Lowe, Phys. Rev. **B10**, 822 (1974).
7. В. Е. Зобов, М. А. Попов, ЖЭТФ **127**, 877 (2005).
8. В. Л. Боднева, А. А. Лундин, ЖЭТФ **135**, 1142 (2009).
9. F. S. Dzheparov, J. of Superconductivity and Novel Magnetism **20**, 161 (2007).
10. Ф. С. Джепаров, В. С. Смелов, В. Е. Шестопал, Письма в ЖЭТФ **32**, 51 (1980).
11. D. Li, Y. Dong, R. G. Ramos et al., Phys. Rev. B **77**, 214306 (2008).
12. D. Li, Y. Dong, R. G. Ramos et al., ArXiv: 0704.3620 [cond-mat.mes-hall].
13. М. И. Булгаков, А. Д. Гулько, Ф. С. Джепаров и др., Письма в ЖЭТФ **58**, 614 (1993).
14. 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).
16. Д. Форстер, *Гидродинамические флуктуации, нарушенная симметрия и корреляционные Функции*, М.: Атомиздат, 1980.
17. D. A. Drabolt and P. A. Fedders, Phys. Rev. B **37**, 3440 (1988).
18. 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.
20. H. Hayashi, K. M. Itoh, and L. S. Vlasenko, Phys. Rev. B **78**, 153201 (2008).
21. M. J. Hirsch and D. F. Holcomb, Phys. Rev. B **33**, 2520 (1986).