

## Спин-спиновая релаксация в магниторазбавленных кристаллах

Ф.С. Джепаров<sup>1,2,3</sup>, Д.В. Львов<sup>1,2</sup>, М.А. Веретенников<sup>4</sup>

<sup>1</sup>*Институт теоретической и экспериментальной физики, г. Москва, 117218, Россия*

E-mail: dzheparov@itep.ru

<sup>2</sup>*Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ», г. Москва, 115409, Россия*

<sup>3</sup>*Московский физико-технический институт, Московск. обл., 141700, Россия*

<sup>4</sup>*Институт радиотехники и электроники РАН, г. Москва, 125009, Россия*

Статья поступила в редакцию 18 августа 2014 г., опубликована онлайн 24 ноября 2014 г.

Рассмотрен магнитный резонанс в ядерной парамагнитной системе при малой концентрации спинов. Вычислены сигнал свободной индукции (ССИ) и функция формы линии резонанса (ФФЛ). В основе теории лежит введение вспомогательной системы, где один спин не имеет флип-флоп взаимодействия с окружением. ССИ для этого спина рассчитан, основываясь на теории Андерсона–Вейсса–Кубо, а его функция памяти использована для построения функции памяти основной системы. Необходимые численные коэффициенты получены на основе концентрационных разложений ССИ. При этом впервые проведен учет переноса поляризации в магниторазбавленных кристаллах. Показано, что это приводит к существенному замедлению спада ССИ при временах, больших времени фазовой релаксации. Проведено сравнение результатов с существующими экспериментальными данными и численным моделированием. Получено удовлетворительное согласие в описании центральной части ФФЛ после введения в теорию дополнительного уширения, наблюдаемого в экспериментах. Выявлено, что данные по амплитуде и положению спутанных максимумов различных экспериментов не очень хорошо согласуются как между собой, так и с теорией.

Розглянуто магнітний резонанс в ядерній парамагнітній системі при малій концентрації спінів. Обчислені сигнал вільної індукції (СВІ) та функція форми лінії резонансу (ФФЛ). В основі теорії лежить введення допоміжної системи, де один спин не має фліп-флоп взаємодії з оточенням. СВІ для цього спіна розраховано, ґрунтуючись на теорії Андерсона–Вейсса–Кубо, а його функцію пам'яті було використано для побудови функції пам'яті основної системи. Необхідні чисельні коефіцієнти отримано на основі концентраційних розкладень ССІ. При цьому вперше проведено облік перенесення поляризації в магніторозбавлених кристалах. Показано, що це призводить до істотного уповільнення спаду СВІ при часах, великих від часу фазової релаксації. Проведено порівняння результатів з існуючими експериментальними даними та чисельним моделюванням. Отримано задовільну згоду в описі центральної частини ФФЛ після введення в теорію додаткового розширення, яке спостерігається в експериментах. Виявлено, що дані по амплітуді та положенню сателітних максимумів різних експериментів не дуже добре узгоджуються як між собою, так і з теорією.

PACS: **05.10.–a** Вычислительные методы в статистической физике и нелинейной динамике;

**05.30.–d** Квантовая статистическая механика;

**05.60.–k** Процессы переноса;

**76.20.+q** Общая теория резонансов и релаксаций.

Ключевые слова: ядерный магнитный резонанс, сигнал свободной индукции, функция формы линии резонанса, электронный парамагнитный резонанс, неупорядоченные среды, магниторазбавленные среды, спиновая динамика, метод функций памяти, кумулянтные разложения.

## 1. Введение

Сигнал свободной индукции  $F(t)$  и форма линии резонанса  $G(\omega)$  принадлежат к основным измеримым величинам в ядерном магнитном резонансе (ЯМР) [1]. Они тщательно измерены в магнитоконцентрированных кристаллах (МКК) как для матричных (например,  $^{19}\text{F}$  в  $\text{CaF}_2$  [2]), так и для примесных ( $^8\text{Li}$  в  $\text{LiF}$  [3]) спинов, и развито соответствующее теоретическое описание (см., например, работы [1,3–6] и ссылки в них). Однако надежная экспериментальная информация о таких магниторазбавленных кристаллических системах (МРК), как  $^{29}\text{Si}$  в монокристалле кремния или  $^{13}\text{C}$  в алмазе, отсутствует. Недавно построена общая теория фазовой релаксации, применимая как для МКК, так и для МРК систем [7–9]. В настоящей работе описаны основы новой теории и проведено сравнение ее результатов с имеющимися экспериментальными данными [10–14].

## 2. Основы теории

Теория объединяет проекционную технику Накадзима–Цванцига и приближение случайного локального поля Андерсона–Вейсса–Кубо (АВК). Оба метода хорошо известны. Проекционная техника часто называется также методом функций памяти (convolution master equations), а приближение АВК — кумулянтными разложениями (convolutionless master equations). В литературе проведено подробное сравнение этих методов и выявлены их достоинства и недостатки. Мы используем оба подхода, объединяя их достоинства и устраняя, в меру возможности, недостатки. В частности, метод функций памяти более гибок, но очень важная для наших целей задача релаксации одного спина в случайном одномерном поле имеет точное решение, которое составляет основу модели АВК. Кроме того, когда взаимодействие со случайным одномерным полем, определяющее сигнал свободной индукции (ССИ) примесного спина, мало, и можно ожидать, что процесс может быть описан методом функций памяти посредством разложения по степеням этого поля, решение на основе главного приближения имеет нефизическое поведение около вершины соответствующей односпиновой функции формы линии (ФФЛ) [15], в противоположность точному решению. Существенно также, что приближение АВК дает хорошее описание ФФЛ примесного ядра [3,6], но не воспроизводит осциллирующей ССИ для спинов матрицы, например в  $\text{CaF}_2$  [2].

При стандартном определении сигнал свободной индукции

$$F(t) = \frac{\langle I_- I_+(t) \rangle_0}{\langle I_- I_+ \rangle_0}, \quad I_+ = I_x + iI_y = \sum_{\mathbf{r}} n_{\mathbf{r}} I_{\mathbf{r}}^+,$$

$$I_- = (I_+)^{\dagger}, \quad \langle \dots \rangle_0 = \text{Tr}(\dots) / \text{Tr}(1). \quad (1)$$

Здесь использовано обычное обозначение  $I_{\mathbf{r}}^{\alpha}$  для односпинового оператора и применено не зависящее от времени число заполнения  $n_{\mathbf{r}}$  узла решетки  $\mathbf{r}$  спином  $I_{\mathbf{r}}$  ( $n_{\mathbf{r}} = (0)1$  [8,9], если узел  $\mathbf{r}$  (не)занят спином  $I_{\mathbf{r}}$ ). Гейзенбергова эволюция в (1) определяется, как обычно [1], секулярной частью гамильтониана диполь-дипольных взаимодействий, которую будем использовать в форме [9]

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

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

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

Мы рассматриваем большие трансляционно-инвариантные в среднем системы, для которых

$$\frac{\langle I_- I_+(t) \rangle_0}{\langle I_- I_+ \rangle_0} = \sum_{\mathbf{q}} F_{\mathbf{q}\mathbf{r}}(t),$$

$$F_{\mathbf{q}\mathbf{r}}(t) = \left\langle n_{\mathbf{q}} n_{\mathbf{r}} \left\langle I_{\mathbf{q}}^- I_{\mathbf{r}}^+(t) \right\rangle_0 \right\rangle_c \cdot \left( c \left\langle I_{\mathbf{r}}^- I_{\mathbf{r}}^+ \right\rangle_0 \right)^{-1}, \quad (4)$$

$\langle \dots \rangle_c$  — усреднение по расположению спинов в образце, т.е. по числам заполнения при заданном значении концентрации  $c = \langle n_{\mathbf{r}} \rangle_c \leq 1$ . В МКК все узлы решетки заполнены спинами и, соответственно, все  $n_{\mathbf{r}} \equiv 1$ . В МРК заполнения узлов случайны, при этом  $c \ll 1$ . Далее ограничимся основной моделью [8,9], в которой заполнения разных узлов независимы, т.е., например,  $\langle n_{\mathbf{r}} n_{\mathbf{q}} \rangle_c = c^2 (1 - \delta_{\mathbf{r}\mathbf{q}}) + c \delta_{\mathbf{r}\mathbf{q}}$ , а все спины равны  $1/2$ . Отметим, что перенос намагниченности в процессе спин-спиновой (фазовой) релаксации существует только при  $\beta_{\mathbf{r}\mathbf{q}} \neq 0$  и проявляется в том, что  $F_{\mathbf{q}\neq\mathbf{r}}(t) \neq 0$ .

Новая теория [7–9] основана на связи между ядром памяти  $M(\tau)$  основного кинетического уравнения

$$\frac{\partial}{\partial t} F(t) = - \int_0^t d\tau M(\tau) F(t - \tau), \quad (5)$$

для ССИ  $F(t)$  одинаковых спинов матрицы и ядром памяти  $M_I(\tau)$  кинетического уравнения

$$\frac{\partial}{\partial t} F_I(t) = - \int_0^t d\tau M_I(\tau) F_I(t - \tau), \quad F_I(t) = \frac{\langle I_0^- I_0^+(t) \rangle_0}{\langle I_0^- I_0^+ \rangle_0}, \quad (6)$$

для односпиновой ССИ  $F_I(t)$  вспомогательной системы, где один спин, расположенный в  $\mathbf{r} = 0$ , не имеет флип-флоп взаимодействия с окружением, а остальные взаимодействия и спины такие же, как в основной сис-

теме. Таким образом, в основной системе  $\beta_{\mathbf{r}\mathbf{q}} = 1$ , а во вспомогательной системе изменены только  $\beta_{\mathbf{r}0} = \beta_{0\mathbf{r}} = 0$ .

Вспомогательный ССИ  $F_I(t)$  может быть рассчитан независимо, основываясь на успешном применении теории АВК к описанию ФФЛ примесных ядер [3,6], тогда уравнение (6) определяет вспомогательное ядро  $M_I(\tau)$ . Связь между  $M(\tau)$  и  $M_I(\tau)$ , которая будет указана ниже, определяет  $M(\tau)$ , и решение уравнения (5) дает искомый ССИ  $F(t)$  спинов матрицы.

Эта программа может быть реализована непосредственно для магнитоконцентрированных систем (например, для кристалла  $\text{CaF}_2$ ), исходя из точных значений первых членов разложений главного и вспомогательного ССИ по степеням времени (на знании моментов  $M_{2n} = (-1)^n (d^{2n}/dt^{2n})F(t=0)$  для основной и вспомогательной систем), и из общих свойств ядер памяти. Используя представления

$$M(\tau) = M_2\chi(\tau), \quad M_I(\tau) = M_{2I}\chi_I(\tau), \quad (7)$$

где  $M_{2I}$  — второй момент вспомогательной системы, можно ожидать, что соотношения  $\chi(\tau) = \chi_I(\tau)$  будут выполняться с точностью порядка  $1/z_e$  ( $z_e$  — эффективное число ближайших соседей). В результате получаем

$$G(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dt}{2\pi} e^{i\omega t} F(t) = \frac{36}{25\pi} \frac{g_c(\omega)}{(\omega g_s(\omega) - 9/5)^2 + (\omega g_c(\omega))^2}, \quad (8)$$

где учтено, что  $M_2 = 16/9 M_{2I}$ , а вещественные функции  $g_c(\omega)$  и  $g_s(\omega)$  определены как

$$\int_0^{\infty} dt e^{i\omega t} F_I(t) = g_c(\omega) + i g_s(\omega). \quad (9)$$

Вспомогательный ССИ равен

$$F_I(t) = \exp\left(-M_{2I} \int_0^t d\tau (t-\tau) \kappa(\tau)\right), \quad (10)$$

где  $\kappa(\tau)$  — корреляционная функция локального поля на спине  $\mathbf{I}_0$ . Результат для магнитоконцентрированной системы показан на рис. 1.

Применение теории к магниторазбавленным системам требует существенной модификации для учета того, что в главном (континуальном) приближении ССИ  $F(t)$  является неаналитической функцией времени, и в главных порядках по спиновой концентрации  $c$  [17]

$$F(t) = 1 - D_A |t| + \frac{5}{9} (D_A t)^2 + O(|D_A t|^3),$$

$$D_A = \frac{2\pi^2}{3\sqrt{3}} \gamma^2 n \hbar, \quad (11)$$

где  $n = c/\Omega$  — число спинов в единице объема,  $\gamma$  — гиромагнитное отношение и  $\Omega$  — объем на один узел

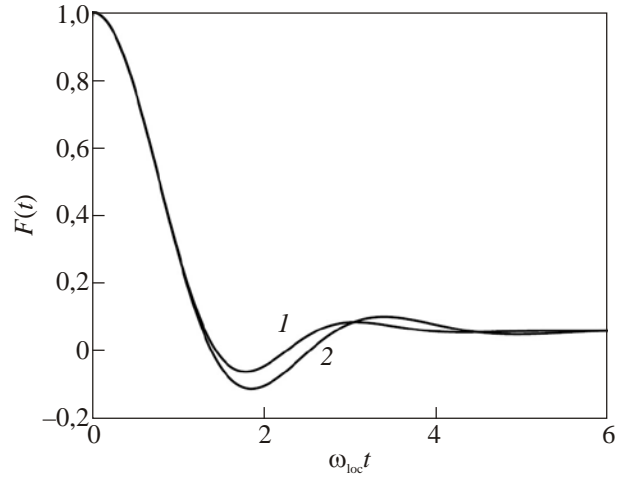


Рис. 1. Сигнал свободной индукции, вычисленный на основе соотношений (8)–(10) (линия 2), в сравнении с подгоночной формулой [2]  $F(t) = a \sin(bt) / (b \operatorname{sh}(at))$  (линия 1). Использовано соотношение  $M_4 = 19/9 M_2^2$  как простейшая аппроксимация для кубических кристаллов (подробнее см. [16]). Три модельных функции  $\kappa(t) = \exp(-(\omega_{\text{loc}} t)^2/4)$ ,  $\kappa(t) = 1/\operatorname{ch} \times (\omega_{\text{loc}} t/\sqrt{2})$  и  $\kappa(t) = 1/(1 + (\omega_{\text{loc}} t)^2/3)^{3/4}$ , где  $\omega_{\text{loc}} = M_2^{1/2}$ , дают линии, совпадающие в пределах их толщин.

кристалла. Поэтому дальше будем использовать концентрационное разложение вместо ряда Тейлора по времени, примененного выше. Напомним, что континуальное приближение соответствует пределу, когда концентрация  $c \rightarrow 0$ , но  $D_A |t| \sim 1$ . Согласно общей теории концентрационных разложений [18,19], второй член в (11) имеет вид

$$F^{(2)}(t) = c \sum_{\mathbf{q}} \left( Q^{(2)}(\mathbf{q}, 0|t) - Q^{(1)}(0|t) \right), \quad (12)$$

$Q^{(1)}(0|t) = 1$  — ССИ для системы, состоящей из одного спина, расположенного в узле 0, а  $Q^{(2)}(\mathbf{q}, 0|t)$  — ССИ для системы из двух спинов, расположенных в узлах 0 и  $\mathbf{q}$ . В соответствующей двухспиновой задаче гамильтониан  $H_d$  приобретает вид

$$H_d^{(2)} = b_{0\mathbf{q}} \left[ 2I_0^z I_{\mathbf{q}}^z - (I_0^x I_{\mathbf{q}}^x + I_0^y I_{\mathbf{q}}^y) \right] = b_{0\mathbf{q}} \left( 3I_0^z I_{\mathbf{q}}^z - \mathbf{I}_0 \mathbf{I}_{\mathbf{q}} \right). \quad (13)$$

Для спинов  $1/2$  выполняется соотношение

$$I_0^z I_{\mathbf{q}}^z = \frac{1}{2} \left[ (I_0^z + I_{\mathbf{q}}^z)^2 - (I_0^z)^2 - (I_{\mathbf{q}}^z)^2 \right] = \frac{1}{2} \left[ (I_0^z + I_{\mathbf{q}}^z)^2 - \frac{1}{2} \right].$$

Поэтому изотропный член гамильтониана (13)

$$b_{0\mathbf{q}} \mathbf{I}_0 \mathbf{I}_{\mathbf{q}} = b_{0\mathbf{q}} \frac{(\mathbf{I}_0 + \mathbf{I}_{\mathbf{q}})^2 - \mathbf{I}_0^2 - \mathbf{I}_{\mathbf{q}}^2}{2} = b_{0\mathbf{q}} \frac{(\mathbf{I}_0 + \mathbf{I}_{\mathbf{q}})^2 - 3/2}{2}$$

коммутирует с первым слагаемым в (13), а поскольку он коммутирует и с оператором  $I_{\mathbf{r}}^+ + I_{\mathbf{q}}^+$ , то он полностью выпадает из расчета  $Q^{(2)}(\mathbf{q}, 0|t)$ . В итоге

$$Q^{(2)}(\mathbf{q}, 0 | t) = \frac{\left\langle (I_0^- + I_{\mathbf{q}}^-) e^{iH_d^{(2)}t} (I_0^+ + I_{\mathbf{q}}^+) e^{-iH_d^{(2)}t} \right\rangle_0}{\left\langle (I_0^- + I_{\mathbf{q}}^-)(I_0^+ + I_{\mathbf{q}}^+) \right\rangle_0} = \cos\left(\frac{3}{2}b_{\mathbf{q}0}t\right)$$

и  $F^{(2)}(t) = c \sum_{\mathbf{q}} [\cos(3b_{\mathbf{q}0}t/2) - 1]$ . Аналогично, для вспомогательного ССИ получается, что

$$F_I^{(2)}(t) = c \sum_{\mathbf{q}} [\cos(b_{\mathbf{q}0}t) - 1].$$

Соответственно, в континуальном пределе, когда

$$c \sum_{\mathbf{q}} \rightarrow n \int d^3q,$$

получается, что  $F^{(2)}(t) = -D_A |t|$ , а  $F_I^{(2)}(t) = -2D_A |t|/3$ .

Поэтому вспомогательный ССИ запишем в форме

$$F_I(t) = \exp\left[-\left(2B^2 \int_0^t d\tau (t-\tau) \exp(-\alpha B |\tau|)\right)^{1/2}\right], \quad (14)$$

где  $B = 2/3 D_A$ , а значение  $\alpha = 1/2$  будет получено ниже на основе сравнения рассчитанного  $F(t)$  с разложением (11). Выбор функции  $\kappa(\tau) = \exp(-\alpha B |\tau|)$  здесь имеет тот же смысл, что и применение  $\kappa(t) = \exp[-(\omega_{\text{loc}} t)^2/4]$  в соотношении (10): это простейшая функция, которая представляет влияние флип-флоп переходов в окружающих спинах и совместна с аналитической структурой разложения (11). Квадратный корень в (14) отражает статические флуктуации взаимодействия центрального спина с его окружением из-за случайного расположения спинов. Если  $\alpha = 0$ , то (12) совпадает с точным решением, полученным Андерсоном и Абрагамом [20] для МРК в континуальном приближении и при отсутствии флип-флоп переходов. Другой метод получения этого решения содержится в работе [21].

Чтобы получить связь между основным и вспомогательным ядрами, удобно использовать представление Лапласа

$$M(\lambda) = \int_0^{\infty} dt \exp(-\lambda t) M(t) = m(\lambda) \sigma(\lambda),$$

$$M_I(\lambda) = \int_0^{\infty} dt \exp(-\lambda t) M_I(t) = m_I(\lambda) \sigma_I(\lambda). \quad (15)$$

Функции  $m(\lambda)$  и  $m_I(\lambda)$  содержат только члены порядка  $c^1$ , соответственно,  $\sigma(\lambda, c \rightarrow 0) = 1$  и  $\sigma_I(\lambda, c \rightarrow 0) = 1$ . Естественно ожидать, что различие между  $\sigma(\lambda)$  и  $\sigma_I(\lambda)$  имеет порядок  $1/z_e$ , где эффективное число соседей  $z_e = 6,6$  [9]. Поэтому примем, что  $\sigma(\lambda) = \sigma_I(\lambda)$ . В результате континуальное приближение дает  $M(\lambda) = 3/2 M_I(\lambda)$ , сравнение разложения решения ура-

внения (5) по концентрации с соотношением (11) приводит к значению  $\alpha = 1/2$ , и для ФФЛ получается [9]

$$G(\omega) = \frac{6}{\pi} \frac{g_c(\omega)}{(\omega g_s(\omega) - 3)^2 + (\omega g_c(\omega))^2}. \quad (16)$$

Численный и аналитический анализ показывают [9], что в главной временной области, где  $F_I(t) > 0,01$ , с достаточной точностью

$$F(t) \approx \Phi(t) = \frac{2}{5} F_I(t) \left[ 1 + \frac{3}{2} F_I^{5/6}(t) - \frac{5}{12} (1 - F_I(t))^2 \right]. \quad (17)$$

Зависимость от кристаллической структуры восстанавливается подстановкой [9]

$$|t| \rightarrow t_e(t) = \frac{c}{D_A} \sum_{\mathbf{r} \neq 0} \left[ 1 - \cos\left(\frac{3}{2}b_{0\mathbf{r}}t\right) \right],$$

$$b_{0\mathbf{r}} = \frac{\gamma^2}{2r^3} (1 - 3\cos^2 \vartheta_{0\mathbf{r}}). \quad (18)$$

Равенство  $|t| = t_e(t)$  достигается, если сумму заменить интегралом

$$\sum_{\mathbf{r} \neq 0} \rightarrow \int \frac{d^3r}{\Omega}.$$

Как мы уже видели, такая замена производилась при получении выражения (11) для  $D_A$ . Соответственно, ФФЛ для кристалла

$$G(\Delta) = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dt}{2\pi} e^{i\Delta t} \Phi(t_e(t)). \quad (19)$$

Результаты расчета ССИ  $F(t)$  в магниторазбавленных системах показаны на рис. 2. Необходимо заметить, что как новая теория (линии 1 и 4), так и ее

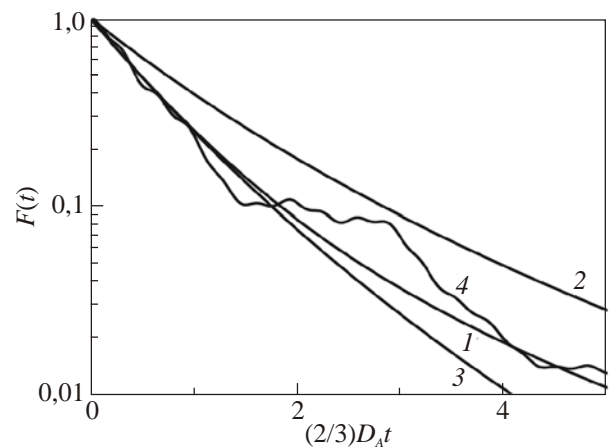


Рис. 2. Сигнал свободной индукции  $F(t)$  для магниторазбавленных систем (1) вычислен по формуле (17). Вспомогательный ССИ  $F_I(t)$  (2), ССИ из [17] (3), где соотношение, аналогичное (10), было применено прямо к  $F(t)$ , ССИ для кристалла кремния при  $c = 0,0467$  и внешнем поле  $\mathbf{H}_0 \parallel [111]$  (4) вычислен по соотношению (19).

предшествующий вариант (линия 3) основаны на одном и том же концентрационном разложении (11), поэтому они совпадают при малых временах. Основное качественное различие между этими зависимостями состоит в том, что новая теория, в отличие от старой, учитывает перенос поляризации в процессе фазовой релаксации. Из полученных результатов следует, что в магниторазбавленных кристаллах осцилляции на масштабе

$$T_2 = \int_0^{\infty} dt F(t) \sim 1/D_A$$

отсутствуют, тогда как в магнитоконцентрированных системах они сильно выражены (см. рис. 1).

### 3. Сопоставление теории с экспериментальными результатами и численным моделированием

Экспериментальные данные для прямого сравнения с нашей теорией для трехмерных систем в настоящее время отсутствуют, так как во всех известных измерениях проявилось значительное уширение другими взаимодействиями. Тем не менее мы выделили работы [10–14], в которых сравнение может быть осуществлено при введении минимальных дополнительных предположений. В этих работах измерения были проведены для ядер  $^{29}\text{Si}$  в кристаллах кремния. На рис. 3 в работах [10,11] показан ССИ для порошка кремния, измеренный методом спинового эха Хана. Он находится в удовлетворительном согласии с соотношением

$$F(t) = F_0(t) = \left\langle \exp \left[ -c \sum_{\mathbf{r} \neq 0} (1 - \cos(b_{0\mathbf{r}}t)) \right] \right\rangle_p, \quad (20)$$

где  $\langle \dots \rangle_p$  означает усреднение по ориентациям кристаллитов. Соотношение (20) соответствует отсутствию флип-флоп взаимодействий для всех спинов в образце (см., например, [21]). Формула (20) была, по видимому, неизвестна авторам, и они выполнили прямое численное моделирование процесса. Полученный результат показывает, что образцы не годились для изучения чисто дипольной динамики. Действительно, как было выявлено в [22], уровень допирования, использованный в [10,11], вызывает большое неоднородное уширение из-за неоднородного сдвига Найта. Оценки показывают [9], что при этом различие сдвигов Найта для ядер  $^{29}\text{Si}$ , расположенных на среднем расстоянии  $r_c = (\Omega/c)^{1/3}$ , много больше, чем ожидаемая дипольная ширина линии  $D_A(c = 0,0467) = 42,1$  Гц. Следовательно, флип-флоп взаимодействия несекулярны и должны быть опущены, что и приводит к соотношению (20).

Функция формы линии  $G(\Delta)$  измерена в [12] для монокристаллов кремния с концентрацией  $c$ , равной 0,012, 0,0467 и 0,103 при  $\mathbf{H}_0 \parallel [111]$ . Авторы выделили

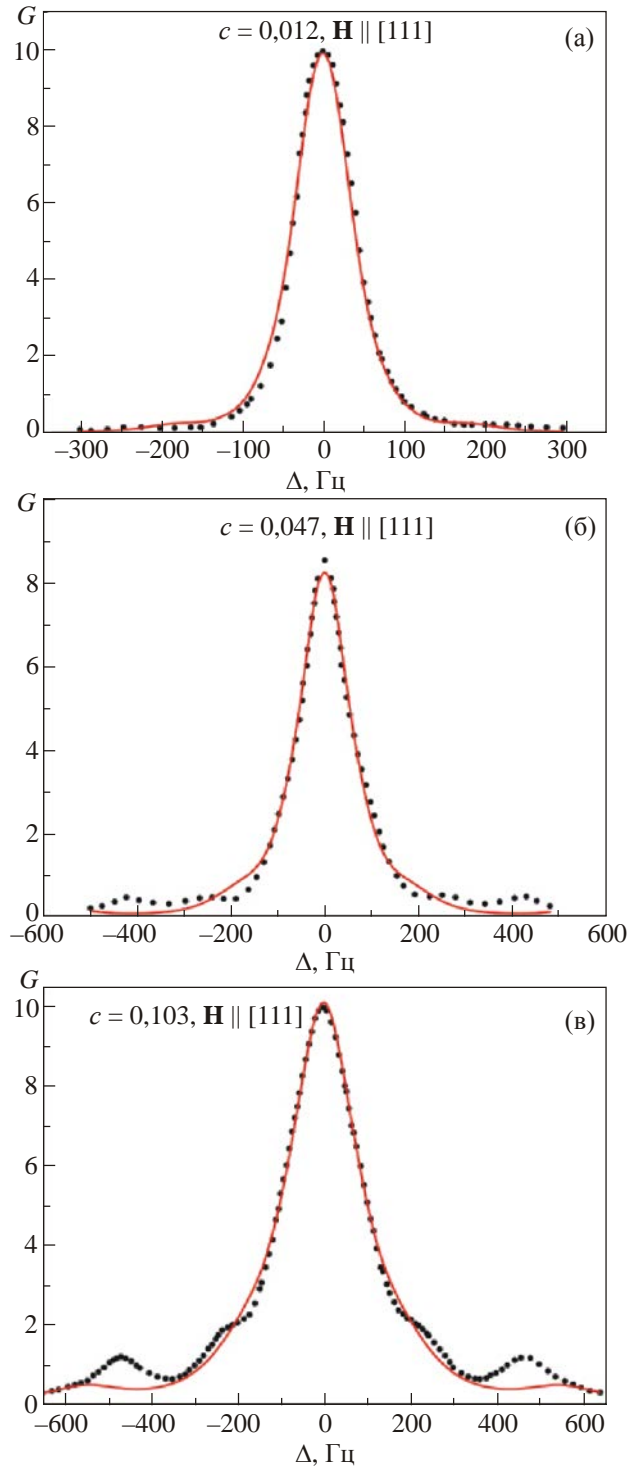


Рис. 3. Сравнение экспериментальных данных [12] (●) с теоретической линией (19) (не содержащей подгоночных параметров), уширенной функцией Фойгта (21), при различных  $c$ .

дипольный вклад в полуширину на полувысоте  $\Delta_{1/2}$  и в  $G(\omega = 0)$ . Они предположили, что добавочное уширение одинаково для всех образцов, а искомые параметры линейно зависят от  $c$ , поэтому они сочли дипольными те части  $\Delta_{1/2}$  и  $G(\omega = 0)$ , которые пропорциональны  $c$ . Нами проведен более подробный анализ, с использо-

ванием рассчитанной (без подгоночных параметров) ФФЛ и уширения функцией Фойгта

$$g_V(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} d\mu \frac{D_L}{\pi[(\omega - \mu)^2 + D_L^2]} \frac{\exp[-\mu^2 / (2D_G^2)]}{(2\pi D_G^2)^{1/2}}, \quad (21)$$

которое, в соответствии с гипотезой авторов [12], принималось одинаковым для всех образцов, а значения  $D_L = 2\pi \cdot 7,6(4)$  Гц и  $D_G = 2\pi \cdot 22,6(6)$  Гц для лоренцевой и гауссовой компонент соответственно были получены при подгонке результатов работы [12]. Как уже отмечалось, в континуальной теории Андерсона–Абрагама [20]  $D_A(c = 0,0467) = 42,1$  Гц. Напомним, что  $D_A \sim c$ . На рис. 3 видно, что центральные части линий находятся в удовлетворительном согласии с теорией, но положения и амплитуды сателлитов существенно отличаются. Сателлиты порождаются спинами, расположенными на расстояниях, сравнимых с минимальным расстоянием между ядрами в кристалле.

Чтобы выяснить причины расхождения, мы провели подобный анализ функций формы линии, измеренных в монокристалле кремния при  $c = 0,0467$  для трех ориентаций внешнего поля в [13,14]. Авторы этих работ обращали особое внимание на сателлиты и утверждали, что имеется хорошее согласие измерений с их теоретическими оценками. Наши результаты показаны на рис. 4.

Согласие нашей теории с измерениями [13,14] в центре линии опять вполне удовлетворительное, а описание сателлитов значительно лучше, чем на рис. 3, но уширение больше:  $D_L = 2\pi \cdot 16(2)$  Гц и  $D_G = 2\pi \cdot 41(2)$  Гц, что подавляет различия. Теоретические оценки работ [13,14] относительно величины и положения сателлитов являются по сути двухчастичными, и они автоматически включаются в соотношения (18) и (19). Поэтому мы дополнительно сравнили наши результаты с численным моделированием, выполненным на шести спинах и представленным на рис. 17 в работе [10], и получили, что положения и величины сателлитов практически совпадают. Этот результат показывает, что правило (19) достаточно точно, и причина различия теории с экспериментом [12] остается невыясненной.

Отметим что прибавление к гамильтониану (2) косвенного спин-спинового взаимодействия ( $J$ -coupling) не может устранить эти различия. Действительно, косвенное взаимодействие эффективно только для ближайших соседей, где его величина по известным данным не превосходит 200 Гц для изотропной части [13]. Однако такое изотропное взаимодействие, как и изотропная часть из диполь-дипольного взаимодействия (13), не даст вклад в главный член концентрационного разложения ССИ (11). Анизотропная же часть косвенного взаимодействия обычно на порядок меньше, поэтому и ее влияние должно быть пренебрежимо мало.

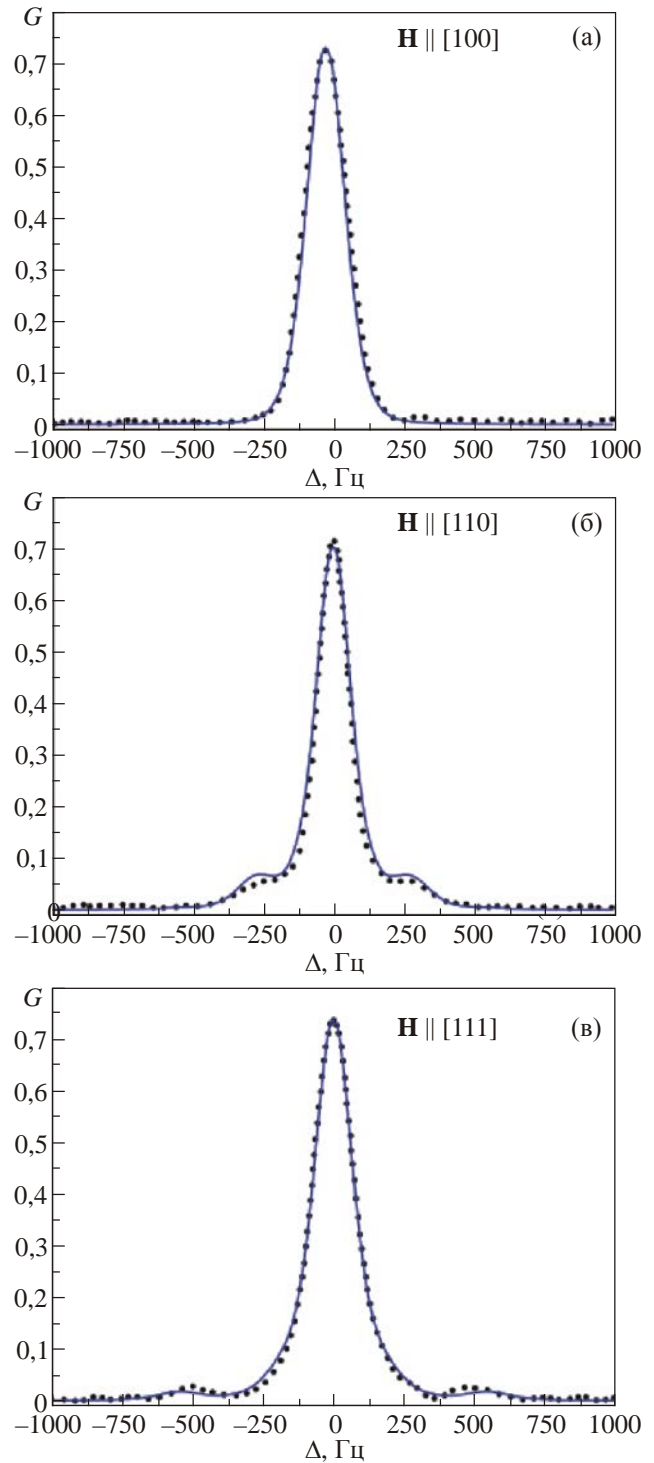


Рис. 4. Сравнение экспериментальных данных [13,14] (●) с теоретической линией (19) (не содержащей подгоночных параметров), уширенной функцией Фойгта (21), при различных направлениях  $\mathbf{H}$ .

Соотношения (1)–(3) могут рассматриваться как базовые и для электронного парамагнитного резонанса (ЭПР). Вместе с тем в ЭПР реализуются гораздо более разнообразные гамильтонианы. Однако нам не известны работы, в которых были бы получены убедитель-

ные данные по дипольной форме линии ЭПР в трехмерных системах.

В работе [23] исследованы ЭПР спектры парамагнитных центров, распределенных на поверхностях пор в активированных углях, т.е. спектры двумерных систем. В [23] была найдена область значений контролируемых параметров, в которой по всем проверенным признакам фазовая релаксация определялась диполь-дипольными взаимодействиями. Наш анализ этих спектров показал, что форма линии ЭПР работы [23] соответствует не чисто диполь-дипольному взаимодействию, а модели Андерсона–Абрагама, т.е. двумерному случаю с  $\beta_{\mathbf{r}\mathbf{q}} = 0$  в гамильтониане (2), когда ССИ имеет форму [23]

$$F(t) = F_2(t) = \left\langle \exp\left(-|B_2(\vartheta_p)t|^{2/3}\right) \right\rangle_{\vartheta}, \quad (22)$$

$\vartheta_p$  — угол между нормалью к поверхности и внешним полем  $H_0$ , а  $\langle \dots \rangle_{\vartheta}$  означает усреднение по этому углу. Явный вид функции  $B_2(\vartheta_p)$  указан в [23]. Близость результатов [23] к выводам модели Андерсона–Абрагама уже отмечалась ранее в [23] и [17]. Однако отсутствие различий между ФФЛ, вычисленной на основе формулы (22), и результатами измерений [23] выявлено впервые. Объяснения этому исчезновению флип-флоп взаимодействия мы сейчас не имеем. Напомним, что подобный результат работ [10,11] для трехмерных ядерных спиновых систем был естественно объяснен выше за счет возникновения большого неоднородного сдвига Найта, в результате которого флип-флоп члены гамильтониана становились несекулярными.

#### 4. Заключение

Проведенное исследование выявило весьма противоречивую картину как в соответствии теории и эксперимента, так и в согласии между результатами различных экспериментов. Для более определенных выводов необходимы дополнительные теоретические и, в первую очередь, экспериментальные исследования.

1. А. Абрагам, М. Гольдман, *Ядерный магнетизм: порядок и беспорядок*, Мир, Москва (1984), т. 1–2.
2. M. Engelsberg and I.J. Lowe, *Phys. Rev. B* **10**, 822 (1974).
3. М.И. Булгаков, А.Д. Гулько, Ф.С. Дзепаров, С.В. Степаров, С.С. Тростин, *Письма ЖЭТФ* **58**, 614 (1993).
4. В.Е. Зобов, М.А. Попов, *ЖЭТФ* **127**, 877 (2005).
5. В.Л. Боднева, А.А. Лундин, *ЖЭТФ* **135**, 1142 (2009).
6. Ю.Г. Абов, А.Д. Гулько, Ф.С. Дзепаров, С.В. Степаров, С.С. Тростин, *ЭЧАЯ* **95**, 1654 (1995).
7. F.S. Dzheparov, *Combining of Projection Operator Technique of Nakajima–Zwanzig with Anderson–Weiss–Kubo Stochastic Local Field Approach for Calculation of Correlation Functions in Spin Dynamics*, in: *Actual Problems of Mag-*

*netic Resonance and its Application. XIII Intern. Youth Scientific School. Program, Lecture Notes, Proceedings*, Kazan State University (2010), p. 11.

8. F.S. Dzheparov, *J. Phys.: Conf. Ser.* **324**, 012004 (2011).
9. Ф.С. Дзепаров, Д.В. Львов, М.А. Веретенников, *Письма ЖЭТФ* **98**, 543 (2013).
10. D. Li, Y. Dong, R.G. Ramos, J.D. Murray, K. MacLean, A.E. Dementyev, and S.E. Barrett, *Phys. Rev. B* **77**, 214306 (2008).
11. D. Li, Y. Dong, R.G. Ramos, J.D. Murray, K. MacLean, A.E. Dementyev, and S.E. Barrett, *arXiv: 0704.3620v1 [cond-mat. mes-hall]*.
12. H. Hayashi, K.M. Itoh, and L.S. Vlasenko, *Phys. Rev. B* **78**, 153201 (2008).
13. A.S. Verhulst, D. Maryenko, Y. Yamamoto, and K.M. Itoh, *Phys. Rev. B* **68**, 054105 (2003).
14. A.S. Verhulst, *Optical Pumping Experiments to Increase the Polarization in Nuclear-Spin Based Quantum Computers*, Thesis, Stanford University (2004).
15. F.S. Dzheparov, *Some Modern Problems in Beta-NMR-Spectroscopy*, in: *VI Int. School on Neutron Physics, Lectures*, Dubna (1991), Vol. 2, p. 58.
16. T. Charpentier, D. Sakellariou, J. Virlet, F.S. Dzheparov, and J.-F. Jacquinot, *J. Chem. Phys.* **127**, 224506 (2007).
17. Ф.С. Дзепаров, И.В. Каганов, *Письма ЖЭТФ* **75**, 309 (2002).
18. Ф.С. Дзепаров, В.С. Смелов, В.Е. Шестопап, *Письма ЖЭТФ* **32**, 51 (1980).
19. Ф.С. Дзепаров, А.А. Лундин, Т.Н. Хазанович, *ЖЭТФ* **92**, 554 (1987).
20. А. Абрагам, *Ядерный магнетизм*, Изд-во иностр. лит., Москва (1963).
21. F.S. Dzheparov, *J. Supercond. and Novel Magnetism* **20**, 161 (2007).
22. M.J. Hirsch and D.F. Holcomb, *Phys. Rev. B* **33**, 2520 (1986).
23. В.А. Ацаркин, Г.А. Васнева, В.В. Демидов, Ф.С. Дзепаров, Б.М. Одинцов, Р.Б. Кларксон, *Письма ЖЭТФ* **72**, 530 (2000).

#### Spin-spin relaxation in magnetically dilute crystals

F.S. Dzheparov, D.V. Lvov, and M.A. Veretennikov

Magnetic resonance in a nuclear paramagnetic system is considered at low spin concentration. Free induction decay (FID) and resonance line shape function (LSF) are calculated. The theory is based on introduction of an auxiliary system where one spin has no flip-flop interaction with surrounding. FID for the spin was calculated using the Anderson–Weiss–Kubo theory, and it's a memory kernel was applied to construct memory kernel of the main system. Necessary numerical coefficients were obtained from the concentration expansion of FID. The theory was first to take into ac-

count the polarization transfer in magnetically dilute systems that produces a substantial slowing down of the decay for times larger than the phase relaxation time. Comparison of the theory with existing experimental results and computer simulations is fulfilled. Satisfactory agreement for the central part of LSF was received after introducing additional broadening existed in the experiments. It is shown that the results of different experiments on magnitude and position of side-band peaks have visible disagreement with one another and with the theory.

PACS: **05.10.-a** Computational methods in statistical physics and nonlinear dynamics;  
**05.30.-d** Quantum statistical mechanics.  
**05.60.-k** Transport processes;  
**76.20.+q** General theory of resonances and relaxations.

Keywords: nuclear magnetic resonance, free induction decay, resonance line shape function, electron paramagnetic resonance, disordered media, magnetically diluted media, spin dynamics, convolution master equation, convolutionless master equation.