

ФОРМА ЛИНИИ МАГНИТНОГО РЕЗОНАНСА В ПРИБЛИЖЕНИИ АНДЕРСОНА ПРИ УЧЕТЕ КВАДРАТИЧНЫХ ФЛУКТУАЦИЙ

© М.А.Попов, В.Е.Зобов

Красноярский государственный университет,
660062 Красноярск, Россия
Институт физики им. Л.В.Киренского Сибирского отделения
Российской академии наук, 660036 Красноярск, Россия
(Поступила в Редакцию 25 апреля 1996 г.)

Исследуется форма линии магнитного резонанса при квадратичной связи резонансной частоты с гауссовским случайным процессом. Рассматриваемый механизм приводит к асимметрии однородно уширенной резонансной линии.

Метод магнитного резонанса широко используется при изучении локальной структуры и подвижности атомов из-за высокой чувствительности резонансной частоты Ω к положению спина в твердом теле. По форме резонансной линии удается судить о характере испытываемых окружением резонирующего спина флуктуаций. Последние часто описываются гауссовским случайным процессом (ГСП) [1,2]; основанием для этого служит как высокая плотность спиновой подсистемы в твердом теле, так и дальное действие в его решеточной подсистеме.

Многочисленные исследования формы линии магнитного резонанса $g(\omega)$ выполнены для случая линейной связи резонансной частоты с ГСП. Так, были получены выражения при сужении линии обменным взаимодействием и движением [1], при воздействии тепловых флуктуаций решетки в несоразмерной фазе [3,4] и т. д.

Однако существуют спиновые системы, у которых резонансная частота является квадратичной функцией ГСП $\xi(t)$

$$\Omega(t) = \Omega_0 + \Omega_1 \xi(t) + \Omega_2 \xi(t)^2 / 2. \quad (1)$$

Это, например, системы подвергнутые облучению сильным радиочастотным полем в условиях «магического» угла [5,6] (флуктуации Ω вызваны спин-спиновым взаимодействием). Отсутствие линейного вклада в частоту Ω ($\Omega_1 = 0$) характерно для спинов, находящихся в частных позициях ячейки кристалла (флуктуации Ω вызваны спин-решеточным взаимодействием). Поэтому в настоящей работе исследуется действие на форму резонансной линии квадратичного ГСП.

Как показано в [1,2], в адиабатическом приближении, учитывающем только секулярную по отношению к эффективному полю на резонирующем спине часть спин-спинового взаимодействия, Фурье-образ линии резонанса равен

$$G(t) = \int_{-\infty}^{\infty} d\omega g(\omega) \exp(-i\omega t) = \left\langle \exp \left\{ -i \int_0^t dt' \Omega(t') \right\} \right\rangle, \quad (2)$$

где обозначенное угловыми скобками усреднение производится по случайному процессу $\xi(t)$. Как известно [7], среднее по ГСП от произвольного произведения случайных переменных равно сумме произведений парных корреляционных функций, полученных всеми возможными спариваниями. Благодаря этому свойству кумулянтный ряд для (2) при $\Omega_2 = 0$ состоит из одного слагаемого [1,2], не считая описывающего начальный частотный сдвиг на Ω_0 ,

$$G(t) = \exp \left\{ -i\Omega_0 t - \Omega_1^2 \int_0^t dt_1 \int_0^{t_1} dt_2 \langle \xi_1 \xi_2 \rangle \right\}, \quad \xi_j \equiv \xi(t_j). \quad (3)$$

Наличие квадратичного вклада ГСП в резонансную частоту ($\Omega_2 \neq 0$) приводит к бесконечному числу таких слагаемых [6]

$$G(t) = \exp \{-i\Omega_0 t + F_O(t) + F_C(t)\}, \quad (4)$$

где

$$F_O(t) = \sum_{n=1}^{\infty} (-i)^n O_n / 2n, \quad F_C(t) = \sum_{n=2}^{\infty} (-i)^n C_n / 2,$$

$$O_n = \Omega_2^n \prod_{j=1}^n \left\{ \int_0^t dt_j \right\} \langle \xi_1 \xi_2 \rangle \langle \xi_2 \xi_3 \rangle \dots \langle \xi_n \xi_1 \rangle$$

— петля n -го порядка,

$$C_n = \Omega_1^2 \Omega_2^{n-2} \prod_{j=1}^n \left\{ \int_0^t dt_j \right\} \langle \xi_1 \xi_2 \rangle \langle \xi_2 \xi_3 \rangle \dots \langle \xi_{n-1} \xi_n \rangle$$

— цепочка n -го порядка.

Название каждого отдельного слагаемого обусловлено совпадением или несовпадением начального и конечного моментов времени в последовательности перемножаемых корреляционных функций. Если петли порождены исключительно квадратичными флуктуациями, то цепочки, начиная с $n = 3$, — совместно и квадратичными, и линейными флуктуациями. Цепочка с $n = 2$ обусловлена исключительно линейными флуктуациями и представлена в (3).

Общий подход к нахождению $F_C(t)$ и $F_O(t)$ при произвольной $\langle \xi(t)\xi \rangle$ развит в [6] и сводится к решению интегрального уравнения для вспомогательного ряда. Численный расчет $G(t)$ для ряда корреляционных функций выявил общность качественных свойств и незначительную количественную зависимость от типа $\langle \xi(t)\xi \rangle$. Поэтому влияние квадратичного вклада ГСП на форму линии магнитного резонанса рассмотрим на примере процесса Орнштейна-Уленбека, т. е. $\langle \xi(t)\xi \rangle = \exp(-\alpha|t|)$. В этом случае вклады петель и цепочек равны [8]

$$F_O(t) = \frac{\alpha t}{2} - \frac{1}{2} \ln \left[\text{ch}(\alpha \epsilon t) + \frac{\epsilon^2 + 1}{2\epsilon} \text{sh}(\alpha \epsilon t) \right], \quad (5)$$

$$F_C(t) = \frac{\Omega_1^2}{\alpha \epsilon^2} \left[-t + \frac{2}{\alpha \epsilon} \frac{\epsilon \text{sh}(\alpha \epsilon t) + \text{ch}(\alpha \epsilon t) - 1}{2\epsilon \text{ch}(\alpha \epsilon t) + (\epsilon^2 + 1) \text{sh}(\alpha \epsilon t)} \right]. \quad (6)$$

где $\epsilon = (1 + 2i\Omega_2/\alpha)^{1/2}$.

Как следует из этих соотношений, в случае статических флуктуаций ($\alpha = 0$) наличие квадратичного вклада ГСП приводит к асимметричному распределению резонансных частот

$$g(\omega) = 2 \exp\{-[\Omega_1^2 + \Omega_2(\omega - \Omega_0)]/\Omega_2^2\} \text{ch}\{\Omega_1[\Omega_1^2 +$$

$$+ 2\Omega_2(\omega - \Omega_0)]^{1/2}/\Omega_2^2\} / \{2\pi[\Omega_1^2 + 2\Omega_2(\omega - \Omega_0)]\}^{1/2}, \quad \Omega_1^2 + 2\Omega_2(\omega - \Omega_0) > 0,$$

$$g(\omega) = 0, \quad \Omega_1^2 + 2\Omega_2(\omega - \Omega_0) < 0. \quad (7)$$

При $\Omega_2 \gg \Omega_1$ (без потери общности полагаем $\Omega_1 > 0$, $\Omega_2 > 0$, знак Ω_1 не влияет на $g(\omega)$); для $\Omega_2 < 0$ резонансную линию можно получить симметричным отражением анализируемой для $\Omega_2 > 0$ относительно частоты Ω_0) монотонный рост $g(\omega)$ с высоких частот оканчивается сингулярностью корневого типа в точке $\omega = \Omega_0 - \Omega_1^2/2\Omega_2$. При $\Omega_2 \ll \Omega_1$ корневая сингулярность уходит далеко в область отрицательных частот и ее интегральный вес спадает по экспоненциальному закону. В центре спектра форма линии

$$g(\omega) \approx \exp\{-(\omega - \Omega_0)^2/2[\Omega_1^2 + \Omega_2(\omega - \Omega_0)]\} / \{2\pi[\Omega_1^2 + 2\Omega_2(\omega - \Omega_0)]\}^{1/2}, \quad (8)$$

близка к гауссовой, но с асимметрией и небольшим сдвигом максимума в точку $\omega \approx \Omega_0 - \Omega_2$.

С другой стороны, быстрые по сравнению с Ω_2 флуктуации ($\Omega_2/\alpha = +0$) приводят к известному выражению (3), которому отвечает симметричная резонансная линия с максимумом в $\omega = \Omega_0 + \Omega_2/2$.

Изменение численно рассчитанной формы резонансной линии с ростом Ω_2 представлено на рис. 1. Кроме развития асимметрии линии внимание привлекает немонотонное изменение положения ее максимума и ширины: первоначальное смещение против знака Ω_2 и сужение, но затем смещение по знаку Ω_2 и уширение.

Такое поведение можно понять, если рассмотреть действие вкладов петель и цепочек по отдельности. Как следует из рис. 2, вклад петель с ростом Ω_2 приводит к монотонному смещению максимума линии по

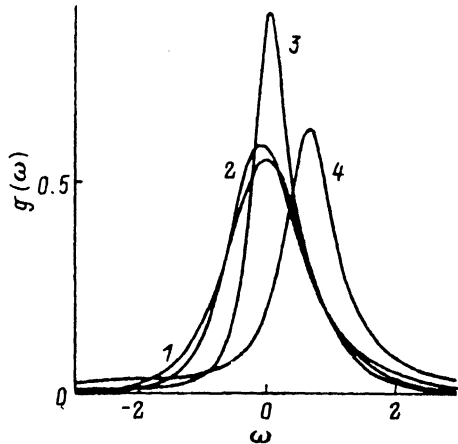


Рис. 1. Форма линии магнитного резонанса при совместном учете вкладов петель и цепочек с $\Omega_1 = 1$. Ω_2 : 1 — 0, 2 — 0.3, 3 — 1, 4 — 3. На всех кривых $\Omega_0 = 0$, $\alpha = 1$.

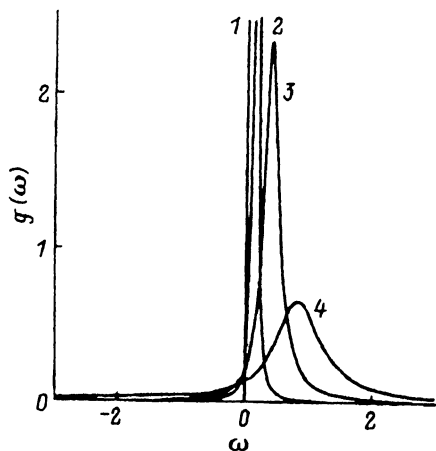


Рис. 2. Форма линии магнитного резонанса при учете вклада только петель ($F_C(t) \equiv 0$). Обозначения те же, что на рис. 1.

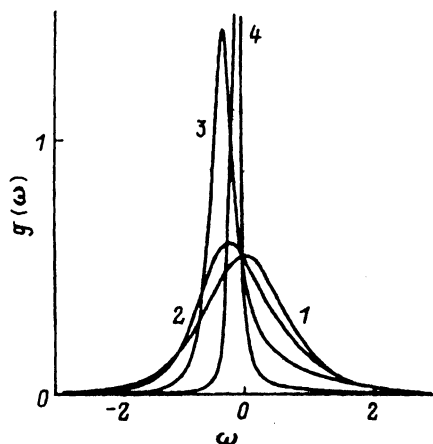


Рис. 3. Форма линии магнитного резонанса при учете вклада только цепочек ($F_O(t) \equiv 0$) с $\Omega_1 = 1$. Обозначения те же, что на рис. 1.

знаку Ω_2 и уширению. К этому же выводу можно прийти из оценки $F_O(t)$ для значений времени $t \gg \alpha^{-1}$

$$\operatorname{Re}\{-F_O(t)/t\} \approx \operatorname{Re}\{\alpha(\varepsilon - 1)/2\} = \alpha \left(\left\{ [1 + (1 + 4\Omega_2^2/\alpha^2)^{1/2}]/2 \right\}^{1/2} - 1 \right) / 2, \quad (9)$$

$$\operatorname{Im}\{-F_O(t)/t\} \approx \operatorname{Im}\{\alpha(\varepsilon - 1)/2\} = \Omega_2/2 \left\{ \left[1 + (1 + 4\Omega_2^2/\alpha^2)^{1/2} \right] / 2 \right\}^{1/2}, \quad (10)$$

где (9) описывает уширение резонансной линии, а (10) описывает сдвиг ее максимума. При быстрых флуктуациях ($\alpha \gg \Omega_2$) сдвиг относительно Ω_0 и ширина линии составляют соответственно $\Omega_2/2$ и $\Omega_2^2/4\alpha$.

Как видно на рис. 3, иное действие оказывает вклад цепочек. Из оценки $-F_C(t)/t \approx \Omega_1^2/\alpha\varepsilon^2$ для значений времени $t \gg \alpha^{-1}$ следует,

что сдвиг максимума линии относительно Ω_0 равен $-2\Omega_1^2\Omega_2/(\alpha^2 + 4\Omega_2^2)$, является немонотонной функцией от Ω_2 и происходит против знака Ω_2 . Ширина линии, равная $\Omega_1^2\alpha/(\alpha^2 + 4\Omega_2^2)$, монотонно спадает с ростом Ω_2 , т. е. квадратичный ГСП уменьшает действие первоначально доминировавшего линейного ГСП. Отметим дополнительно быстрое развитие асимметрии линии при вкладе цепочек, которому отвечает и начальный быстрый рост первого слагаемого в выражении для характеризующего асимметрию спектра [2] третьего центрального момента $3\Omega_1^2\Omega_2 + \Omega_2^3$ по сравнению с последним слагаемым, отвечающим вкладу петель.

Таким образом, благодаря квадратичным флуктуациям однородно уширенная резонансная линия становится асимметричной. Проведенное исследование обнаружило немонотонную зависимость ее формы от соотношения между коэффициентами перед членами, описывающими вклады линейных и квадратичных флуктуаций в резонансную частоту.

Работа выполнена при финансовой поддержке Госкомвуза России (грант № 94-31.3-14).

Список литературы

- [1] P. Royen, K. Swars. *Angew Chem.* **69**, 24, 779 (1957).
- [2] Ю.Н. Вeneвцев, Г.С. Жданов, С.П. Соловьев, Е.В. Беаус, В.В. Иванова, С.А. Федулов, А.Г. Каньшев. *Кристаллография* **5**, 4, 620 (1960).
- [3] Ю.Е. Рогинская, Ю.Я. Томашпольский, Ю.Н. Вeneвцев, В.Н. Петров, С.Г. Жданов. *ЖЭТФ* **23**, 1, 47 (1966).
- [4] P. Fisher, M. Polonska, I. Sosnovska, M. Szymanski. *J. Phys. C: Sol. Stat. Phys.* **13**, 10, 1931 (1980).
- [5] Г.А. Смоленский, В.А. Исупов, А.И. Аграновская, Н.Н. Крайник. *ФТТ* **2**, 11, 2982 (1960).
- [6] C. Tabares-Munos, J.-P. Rivera, A. Bezinges, A. Monnier, H. Schmid. *Jap. J. Appl. Phys.* **24**, 12, 1051 (1985).
- [7] Г.А. Смоленский, В.А. Боков, А.И. Мицек. *Изв. АН СССР. Сер. физ.* **28**, 4, 614 (1964).
- [8] I. Sosnovska, T. Peterlin-Neumaier, E. Stuchele. *J. Phys. C* **15**, 23, 4835 (1982).
- [9] Per Bak, M. Høgh Jensen. *J. Phys. C* **13**, L881 (1980).
- [10] G. Shirane, R. Cowley, C. Maikrzak, J.B. Sokoloff, B. Pagonis, C.H. Perry, Y. Ishikawa. *Phys. Rev.* **B 28**, 11, 6251 (1983).
- [11] Ю.Ф. Попов, А.К. Звездин, Г.П. Воробьев, А.М. Кадомцева, В.А. Мурашев, Д.Н. Раков. *Письма в ЖЭТФ* **57**, 1, 65 (1993).
- [12] Ю.А. Изюмов. *Дифракция нейтронов на длиннопериодических структурах*. Энергоатомиздат. М. (1987). С. 200.