

СИГНАЛЫ ЭПР И ПРОДОЛЬНОГО ОТКЛИКА В СПИНОВЫХ СИСТЕМАХ, СОСТОЯЩИХ ИЗ ЛОКАЛИЗОВАННЫХ ($S = 1/2$) И ДЕЛОКАЛИЗОВАННЫХ СПИНОВ

Н. П. Фокина, К. О. Хуцишвили***

*Тбилисский государственный университет им. И. Джавахишвили
380028, Тбилиси, Грузия*

Поступила в редакцию 24 мая 2002 г.

Спиновая система многих новых и перспективных материалов, таких как высокотемпературные сверхпроводники, фуллерены, фуллериды, манганиты с колоссальным магнитосопротивлением, состоит из локализованных спинов (*s*-спины — примесные парамагнитные центры) и делокализованных спинов (*e*-спины носителей проводимости). Эти два вида спинов связаны обменным взаимодействием, которое приводит к связанный прецессии соответствующих намагниченностей. При исследовании указанных выше веществ методами ЭПР наиболее информативными являются результаты измерения времен продольной (T_1) и поперечной (T_2) релаксаций. Однако наличие неоднородного уширения ЭПР *s*-спинов часто затрудняет измерения T_2 , а малые значения T_1 делают невозможным его измерение обычными методами. Поэтому в работах Азаркина с соавторами [4, 7, 8] была разработана новая версия метода измерения T_1 по сигналам продольного отклика, наводимым в продольной спиновой катушке (ориентированной вдоль постоянного магнитного поля) при низкочастотной модуляции СВЧ-мощности, очень слабо, но все же насыщающей ЭПР. Ранее интерпретация результатов, полученных в экспериментах по измерению продольного отклика, для образцов, содержащих взаимодействующие *s*- и *e*-спины, проводилась по формулам для одного сорта спинов. В данной работе рассмотрение проведено для намагниченостей *s*- и *e*-спинов, прецессирующих в условиях их релаксационной связанныности, что соответствует реальной ситуации, например, в фуллериде. Вычисленная полная восприимчивость ЭПР представлена в виде, позволяющем определять происхождение (от *s*- или *e*-спинов) каждого из двух лоренцианов, характеризующихся каждый одним из нормальных затуханий двух связанных осцилляторов (прецессирующих поперечных компонент намагниченостей). Общая линия ЭПР разложена аналитически на эти лоренцианы, и специальные множители учитывают влияние другого сорта спинов на амплитуду сигнала от рассматриваемого сорта. Полученные выражения для продольного отклика, аналогично сигналам поглощения ЭПР, разделены на части, имеющие происхождение от *s*- и *e*-спинов и пропорциональные каждая формфактору одной из мод (*s*- или *e*-подобной). Качественное сравнение дает хорошее согласие с экспериментальными данными по ЭПР и продольному отклику в фуллериде.

PACS: 71.30.+h, 74.70.Wz, 76.30.-v, 76.30.Pk

1. ВВЕДЕНИЕ

Новые материалы, например, высокотемпературные сверхпроводники (ВТСП), фуллерены, фуллериды, манганиты с колоссальным магнитосопротивлением, обнаруживающие интересные и перспективные с точки зрения практического использования этих материалов магнитные и электрические

свойства [1, 2], успешно изучаются методами ЭПР [3, 4]. В этих материалах, как правило, существует несколько типов парамагнитных центров, связанных друг с другом спин-спиновыми взаимодействиями. В проводящих системах это прежде всего носители заряда (электроны или дырки), обычно обозначаемые как *e*-спины, и локализованные парамагнитные центры примесей или основной решетки (*s*-спины). К таким материалам относится фуллерид RbC₆₀ в полимерной фазе, где роль локализованных спинов с $S = 1/2$ играют оборванные концы поли-

*E-mail: n_fokina@caucasan.net

**E-mail: garemo@hotmail.com

мерных цепей.

С точки зрения понимания природы фазовых переходов, которые происходят в таких материалах, наибольший интерес представляет исследование их внутренних флуктуирующих магнитных полей. Информацию об их амплитудах и временах корреляции извлекают из измерения времен продольной (T_1) и поперечной (T_2) спиновых релаксаций. Время поперечной релаксации измеряют обычно по ширине линии ЭПР, однако присутствующее неоднородное уширение часто маскирует вклад флуктуирующих полей, а малые значения времен продольной релаксации (10^{-10} – 10^{-7} с) делают невозможным их измерение обычным методом регистрации постоянной времени восстановления сигнала ЭПР после его стационарного насыщения.

В работах [5, 6] был предложен метод измерения столь коротких времен по сигналам продольного отклика, наводимым в продольной катушке (ориентированной вдоль постоянного магнитного поля) при низкочастотной модуляции СВЧ-мощности, очень слабо, но все же насыщающей ЭПР. Этот метод был усовершенствован и использован для измерения времен T_1 и T_2 в ряде материалов [7–10]. Однако интерпретация результатов для образцов, содержащих связанные взаимодействием s - и e -спины, проводилась по формулам, выведенным в [4–6] на основе уравнений Блоха для одного сорта спинов. Между тем многолетние экспериментальные и теоретические исследования ЭПР в металлах с парамагнитными примесями [11] демонстрируют, что в этих веществах обменное взаимодействие s - и e -спинов приводит к двум четко выраженным особенностям в прецессии намагниченностей. Первая из них связана с динамическим сдвигом невозмущенных (парциальных) резонансных частот s - и e -спинов, а вторая, наиболее важная для наших целей, — со сдвигами парциальных величин, характеризующих затухания, т. е. с изменением ширин линий ЭПР. Очевидно, что перечисленные особенности прецессии намагниченностей должны отражаться на поведении продольных компонент намагниченностей, движение которых является источником для сигналов продольного отклика. Следовательно, теоретическое исследование сигналов продольного отклика с учетом s – e -связи является необходимым для дальнейшего развития метода продольного отклика в системах с взаимодействующими s - и e -спинами. Такое исследование и является целью данной работы.

ЭПР двух связанных сортов спинов в металлах с парамагнитными примесями был исследован на основе уравнений Блоха–Хасегавы в работах [11, 12].

В них были подробно рассмотрены спектры связанных прецессирующих поперечных компонент намагниченностей, т. е. частоты и ширины линий ЭПР, а для ряда конкретных образцов был проведен численный расчет восприимчивости ЭПР. Поскольку изучение насыщения ЭПР не входило в задачу авторов работ [11, 12], эволюция продольных компонент намагниченностей там вообще не рассматривалась.

Отметим, что в отличие от работы [11] мы вычисляем полную восприимчивость ЭПР в виде, позволяющем определять происхождение (от s - или e -спинов) каждого из двух лоренцианов, на которые общая линия ЭПР разложена аналитически. Эти лоренцианы характеризуются каждый одним из нормальных затуханий двух связанных осцилляторов (прецессирующих поперечных компонент намагниченостей). Специальные множители, содержащие коэффициенты усиления и ослабления сигналов ЭПР, включают в себя полную информацию о влиянии другого сорта спинов на амплитуду наблюдаемого.

Однако для интерпретации экспериментов по продольному отклику необходимо включение в рассмотрение эффектов насыщения, т. е. нутационного движения векторов намагниченностей относительно оси z . Поэтому в данной работе встает задача согласования связанный прецессии поперечных компонент намагниченностей двух сортов спинов со связанный эволюцией их продольных компонент. Эту задачу необходимо решить в условиях, когда все компоненты двух намагниченностей меняются как под воздействием внешнего модулированного насыщающего СВЧ-поля, так и вследствие присущих им релаксационных процессов.

Считая связь между s - и e -спинами чисто релаксационной (что соответствует большинству экспериментальных ситуаций), мы проводим замену переменных, позволяющую записать для новых переменных расцепленные уравнения, характеризующиеся нормальными затуханиями (ширинами линий ЭПР). Далее, дополняем уравнения для медленных амплитуд нормальных поперечных компонент намагниченностей уравнениями для индивидуальных продольных компонент, на основе чего и рассматриваем нутационное движение в спиновой системе. В процессе такого движения в модуляционном эксперименте имеет место своеобразный релаксационный резонанс между внешним низкочастотным периодическим воздействием на спин-систему (модуляция СВЧ-мощности, насыщающей ЭПР) и естественным движением компонент намагниченностей под действием релаксационных процессов. При этом

возникают зависящие от времени поправки к стационарным значениям индивидуальных намагниченостей.

Вычислена сумма индивидуальных синфазных и квадратурных поправок представлена в виде суммы сигналов, пропорциональных формфакторам двух мод ЭПР и характеризующихся двумя наборами поперечных и продольных нормальных затуханий. Эти затухания измеряются в эксперименте по наблюдению продольного отклика с помощью методик, разработанных в [7–10].

Первые шаги к осуществлению очерченной выше программы были предприняты нами ранее [13]. В предлагаемой работе решение задачи осуществляется более последовательно, благодаря чему создается теоретическая база для развития метода продольного отклика на случай релаксационно связанных *s*- и *e*-спинов, что представляет особый интерес при исследовании новых перспективных материалов.

Проведено качественное сравнение с экспериментальными данными по ЭПР и продольному отклику в фуллериде.

2. ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ И ВЫЧИСЛЕНИЕ СИГНАЛА ПОГЛОЩЕНИЯ ЭПР СВЯЗАННОЙ СИСТЕМЫ *s*- И *e*-СПИНОВ

Рассмотрим спиновую систему образца, содержащего локализованные (*s*) спины ($S = 1/2$) и делокализованные (*e*) спины, связанные обменным взаимодействием

$$H_{ex} = -2J \sum_{i,j} \mathbf{S}_{si} \mathbf{S}_{ej} \delta(\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j), \quad (1)$$

где \mathbf{S}_{si} — локализованный спин, занимающий *i*-й узел решетки, \mathbf{S}_{ej} — делокализованный спин. Образец находится в постоянном магнитном поле $\mathbf{H}_0 \parallel z$ и в переменном поле $H^x = 2H_1 \cos \omega t$, направленном вдоль оси *x*; *s*- и *e*-спины обладают зеемановской энергией, *e*-спины обладают еще и кинетической энергией. В эксперименте часто встречается случай [7, 8], когда динамические сдвиги частот прецессии *s*- и *e*-спинов не наблюдаются. В дальнейшем будем рассматривать именно такой случай; *g*-факторы *s*- и *e*-спинов также будем считать равными. Тогда частоты прецессии *s*- и *e*-спинов равны и связь между соответствующими намагниченостями носит чисто релаксационный характер. Вследствие огромного преобладания кинетической энергии *e*-спинов над зеемановскими энергиями *s*- и *e*-спинов в рассматриваемой системе нет выделенного направления [14], поэтому уравнения Бло-

ха–Хасегавы [11], описывающие эволюцию намагниченностей *s*- и *e*-спинов, характеризуются изотропией релаксационного поведения *x*-, *y*-, *z*-компонент векторов намагниченостей *s*- и *e*-спинов, обозначаемых далее $M_{s,e}^{x,y,z}$.

Переходя в целях наглядности описания и удобства дальнейших вычислений в исходных уравнениях Блоха–Хасегавы [11] для поперечных компонент намагниченностей к дифференциальным уравнениям второго порядка, а уравнения для продольных компонент оставляя в виде дифференциальных уравнений первого порядка, получаем

$$\begin{aligned} \ddot{M}_s^x + \omega_0^2 M_s^x + 2\omega_\delta'' \dot{M}_s^x + 2\omega_\alpha'' \dot{M}_e^x &= \\ &= -\omega_0 \frac{g_s \mu_B}{\hbar} H^x M_s^z, \end{aligned} \quad (2)$$

$$\begin{aligned} \ddot{M}_e^x + \omega_0^2 M_e^x + 2\omega_\gamma'' \dot{M}_e^x + 2\omega_\beta'' \dot{M}_s^x &= \\ &= -\omega_0 \frac{g_e \mu_B}{\hbar} H^x M_e^z, \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \dot{M}_s^z + T_s^{-1} M_s^z - T_{es}^{-1} M_e^z &= T_{sL}^{-1} M_s^0 - \frac{g_s \mu_B}{\hbar} H^x M_s^y, \\ \dot{M}_e^z + T_e^{-1} M_e^z - T_{se}^{-1} M_s^z &= T_{eL}^{-1} M_e^0 - \frac{g_e \mu_B}{\hbar} H^x M_e^y, \end{aligned} \quad (3)$$

где ω_0 — общая ларморовская частота *s*- и *e*-спинов,

$$\begin{aligned} \omega_\delta'' &= T_{se}^{-1} + T_{sL}^{-1}, & \omega_\gamma'' &= T_{es}^{-1} + T_{eL}^{-1}, \\ \omega_\alpha'' &= -T_{es}^{-1}, & \omega_\beta'' &= -T_{se}^{-1}, \end{aligned}$$

величина T_s^{-1} при однородном уширении ЭПР обоих сортов спинов с $S = 1/2$ совпадает с величиной ω_δ'' , а величина T_e^{-1} — с ω_γ'' . Однако такое совпадение нарушается при наличии неоднородного уширения или тонкой структуры ЭПР локализованных спинов. Поскольку в окончательных формулах мы будем учитывать неоднородное уширение *s*-спинов, что повлечет за собой изменение поперечного парциального затухания ω_δ'' , но не скорости продольной релаксации T_s^{-1} , представляется целесообразным заранее отличить обозначениями, с одной стороны, величины, характеризующие затухания поперечных компонент намагниченостей, и, с другой стороны, скорости релаксации продольных компонент.

Далее, T_{se}^{-1} и T_{es}^{-1} — кинетические коэффициенты, характеризующие связь *s*- и *e*-систем, которые в металлах принято называть соответственно скоростями релаксации Корринги и Оверхаузера; при равных *g*-факторах спинов они связаны соотношением $T_{se}/T_{es} = \chi_s/\chi_e$ [11], где χ_s и χ_e — статические восприимчивости *s*- и *e*-спинов; T_{sL}^{-1} и T_{eL}^{-1} — скорости релаксаций *s*- и *e*-спинов к решетке.

Из этих уравнений следует, что прецессия намагниченостей в поперечной плоскости представляет

собой осциллирующее движение двух релаксационно связанных осцилляторов. Движение связанных продольных компонент в отсутствие неоднородного уширения и тонкой структуры ЭПР происходит со скоростями релаксации, равными величинам, характеризующим затухание поперечных компонент.

Будем считать выполненным условие сильного постоянного магнитного поля, т. е. предполагать, что лармировская частота гораздо больше всех величин, характеризующих затухания. Тогда связанное релаксационное движение является медленным и имеется основание перейти к медленным амплитудам (см. монографию [15]):

$$\begin{aligned} M_{s,e}^x &= \frac{1}{2} \tilde{M}_{s,e}^x(t) e^{-i\omega t} + \text{с.с.} = \\ &= \frac{1}{2} (u_{s,e\perp}(t) + i v_{s,e\perp}(t)) e^{-i\omega t} + \text{с.с.} = \\ &= u_{s,e\perp}(t) \cos \omega t + v_{s,e\perp}(t) \sin \omega t, \\ \tilde{M}_{s,e}^x(t) &\equiv u_{s,e\perp}(t) + i v_{s,e\perp}(t), \\ |\tilde{M}_{s,e}^x(t)| &\ll |\omega_0 \tilde{M}_{s,e}^x(t)|, \end{aligned} \quad (4)$$

где ω — частота переменного поля

$$H^x = \frac{1}{2} \tilde{H}^x e^{-i\omega t} + \text{с.с.}, \quad \tilde{H}^x = 2H_1. \quad (5)$$

Из (2) с помощью преобразований (4), (5) получаем следующие уравнения, описывающие эволюцию связанных комплексных поперечных медленных амплитуд:

$$\begin{aligned} \dot{\tilde{M}}_s^x + \omega''_\delta \tilde{M}_s^x + \omega''_\alpha \tilde{M}_e^x - i(\omega - \omega_0) \tilde{M}_s^x &= \\ &= -i \frac{g_s \mu_B}{\hbar} H_1 M_s^z, \\ \dot{\tilde{M}}_e^x + \omega''_\gamma \tilde{M}_e^x + \omega''_\beta \tilde{M}_s^x - i(\omega - \omega_0) \tilde{M}_e^x &= \\ &= -i \frac{g_e \mu_B}{\hbar} H_1 M_e^z. \end{aligned} \quad (6)$$

Уравнения для продольных компонент намагниченностей по своему характеру являются медленными.

Для расчета спектра величин, характеризующих затухание движения в поперечной плоскости, ищем решение системы (6) в виде

$$\tilde{M}_{s,e}^x = m_{s,e}^x e^{-\omega'' t}$$

(величины ω'' размерности частоты будем в дальнейшем называть просто «затухания»). Подставляя это выражение в два первых уравнения (6) в отсутствие внешнего переменного поля, получаем, что поперечные медленные амплитуды имеют спектр величин, характеризующих затухания, даваемый решениями уравнения

$$(\omega'' - \omega''_\delta)(\omega'' - \omega''_\gamma) - \omega''_\alpha \omega''_\beta = 0. \quad (7)$$

Эти решения представляют собой поперечные нормальные затухания $\omega''_{(t)}$ и $\omega''_{(-t)}$ [16] (индекс t принимает значения «плюс» и «минус»: $\omega''_{(+)} — нормальное затухание, которое больше большего поперечного парциального затухания; $\omega''_{(-)} — меньше меньшего), которые есть наблюдаемые в эксперименте ширины линий ЭПР в линейном случае (когда продольные компоненты намагниченностей не отличаются от своих равновесных значений).$$

Система дифференциальных уравнений (3)–(6) содержит эффект насыщения, и записать ее общее решение не представляется возможным. Первым шагом для ее решения может служить расцепление уравнений для поперечных медленных амплитуд. Для этого проведем следующее линейное преобразование:

$$\begin{aligned} \tilde{M}_s^x &= \tilde{M}_{(t)}^x + k_{(-t)}^{-1} \tilde{M}_{(-t)}^x, \\ \tilde{M}_e^x &= k_{(t)} \tilde{M}_{(t)}^x + \tilde{M}_{(-t)}^x, \end{aligned} \quad (8)$$

где величины

$$\begin{aligned} k_{(t)} &= \frac{\omega''_{(t)} - \omega''_\delta}{\omega''_\alpha} = \frac{\omega''_\beta}{\omega''_{(t)} - \omega''_\gamma}, \\ k_{(-t)} &= \frac{\omega''_{(-t)} - \omega''_\delta}{\omega''_\alpha} = \frac{\omega''_\beta}{\omega''_{(-t)} - \omega''_\gamma} \end{aligned} \quad (9)$$

являются коэффициентами распределения амплитуд на частотах $\omega''_{(t)}$ и $\omega''_{(-t)}$ [17]. Если конкретизировать, какой поперечный релаксационный «осциллятор» обладает большим парциальным затуханием, то величины $k_{(t)}$, $k_{(-t)}$ приобретают знакомый смысл. Например, если s -система обладает большим парциальным затуханием, то

$$k_{(t=-)} = \eta_{s-enh}, \quad k_{(-t=+)} = -\eta_{e-sup pr}^{-1},$$

где η_{s-enh} — коэффициент усиления [13, 18] поперечной медленной амплитуды s -спинов, $\eta_{e-sup pr}$ — коэффициент подавления поперечной медленной амплитуды e -спинов. Если же s -система обладает большим парциальным затуханием, то

$$k_{(-t=-)} = \eta_{e-enh}^{-1}, \quad k_{(t=+)} = -\eta_{s-sup pr}.$$

Подставляя (8) в уравнения (6) с вынуждающей силой, получаем расцепленные уравнения для новых переменных

$$\begin{aligned} \dot{\tilde{M}}_{(t)}^x + \omega''_{(t)} \tilde{M}_{(t)}^x - i(\omega - \omega_0) \tilde{M}_{(t)}^x &= \\ &= -i \frac{g \mu_B}{\hbar} H_1 M_s^z \tilde{K}_{s(t)}, \\ \dot{\tilde{M}}_{(-t)}^x + \omega''_{(-t)} \tilde{M}_{(-t)}^x - i(\omega - \omega_0) \tilde{M}_{(-t)}^x &= \\ &= -i \frac{g \mu_B}{\hbar} H_1 M_e^z \tilde{K}_{e(-t)}, \end{aligned} \quad (10)$$

где

$$\begin{aligned}\tilde{K}_{s(t)} &= \frac{\left(\omega''_{(t)} - \omega''_\gamma\right) \left(1 + k_{(t)}\right)}{\omega''_{(t)} - \omega''_{(-t)}}, \\ \tilde{K}_{e(-t)} &= \frac{\left(\omega''_{(-t)} - \omega''_\delta\right) \left(1 + k_{(-t)}^{-1}\right)}{\omega''_{(-t)} - \omega''_{(t)}}.\end{aligned}\quad (11)$$

Из расцепленности этих уравнений видно, что новые переменные являются нормальными (т. е. модовыми) переменными. Уравнения (10) гласят, что t -мода s -подобна, а $(-t)$ -мода e -подобна. Это означает, что при отсутствии релаксационной связи ($\omega''_\alpha = \omega''_\beta = 0$) нормальные затухания $\omega''_{(t)}$ и $\omega''_{(-t)}$ переходят в парциальные затухания $s(e)$ -спинов, соответственно ω''_δ и ω''_γ .

Мнимую часть динамической восприимчивости (сигнал поглощения ЭПР) найдем по формуле [19]

$$\begin{aligned}\chi'' &= -\frac{v_{s\perp}^{st} + v_{e\perp}^{st}}{2H_1} = \\ &= -\frac{1}{2H_1} \left[(1 + k_{(t)}) v_{(t)}^{st} + (1 + k_{(-t)}^{-1}) v_{(-t)}^{st} \right],\end{aligned}\quad (12)$$

где $v_{(t)}^{st}$ и $v_{(-t)}^{st}$ — стационарные значения модовых блоховских сигналов поглощения в линейном случае, когда продольные компоненты намагниченностей не отличаются от своих равновесных значений. В результате получаем

$$\chi''_{ESP} = \frac{\pi g \mu_B}{2\hbar} \left[M_s^0 K_{s(t)} g_{(t)} (\omega - \omega_0) + M_e^0 K_{e(-t)} g_{(-t)} (\omega - \omega_0) \right], \quad (13)$$

где

$$\begin{aligned}g_t(\omega - \omega_0) &= \frac{\omega''_{(t)}}{\pi} \frac{1}{(\omega - \omega_0)^2 + \omega''_{(t)}^2}, \\ K_{s(t)} &= \tilde{K}_{s(t)} (1 + k_{(t)}), \\ K_{e(-t)} &= \tilde{K}_{e(-t)} \left(1 + k_{(-t)}^{-1}\right).\end{aligned}\quad (14)$$

Если в выражениях (14) перейти к обычным коэффициентам усиления—ослабления, результат (13) совпадет с выражением (8) из [13], полученным с помощью функций Грина.

3. СИГНАЛ ПРОДОЛЬНОГО ОТКЛИКА В СВЯЗАННОЙ СИСТЕМЕ s - И e -СПИНОВ

Для вычисления сигнала продольного отклика дополним уравнения (10) уравнениями (3) для индивидуальных продольных намагниченностей, кото-

рые по своему характеру являются медленными переменными. Чтобы связать эволюцию индивидуальных продольных компонент с эволюцией двух попечерных мод, в уравнения для продольных компонент намагниченностей подставим преобразование (8). В итоге совместному решению подлежат уравнения (10) и уравнения

$$\begin{aligned}\dot{M}_s^z + T_s^{-1} M_s^z - T_{es}^{-1} M_e^z &= \\ &= T_{sL}^{-1} M_s^0 + \frac{g \mu_B}{\hbar} H_1 \left(v_{(t)} + k_{(-t)}^{-1} v_{(-t)} \right), \\ \dot{M}_e^z + T_e^{-1} M_e^z - T_{se}^{-1} M_s^z &= \\ &= T_{eL}^{-1} M_e^0 + \frac{g \mu_B}{\hbar} H_1 \left(k_{(t)}^{-1} v_{(t)} + v_{(-t)} \right).\end{aligned}\quad (15)$$

Подчеркнем, что уравнения (10) и (15) являются точными в рамках предположения о сильном магнитном поле (ω_0 гораздо больше всех затуханий). Эти уравнения описывают насыщение ЭПР в системе обменно-связанных s - и e -спинов при произвольной величине взаимодействия между ними.

Для вычисления сигналов, регистрируемых продольной катушкой при модуляции мощности СВЧ-поля, насыщающего ЭПР, в полученных уравнениях примем

$$\frac{g \mu_B}{\hbar} H_1 = \sqrt{a + b \cos \Omega t},$$

где $a \hbar^2 (g \mu_B)^{-2}$ — квадрат амплитуды СВЧ-поля, насыщающего ЭПР, b/a — глубина модуляции соответствующей СВЧ-мощности, частота модуляции Ω гораздо меньше ω_0 .

Как и в работах [5, 6], предполагаем, что модуляция приводит лишь к малым зависящим от времени поправкам к стационарным значениям продольных компонент:

$$M_{s,e}^z = M_{s,e}^{zst} + m_{s,e}^z(t).$$

Отклик в продольной катушке, часть которого находится в фазе с модуляцией, а часть сдвинута по фазе на $\pi/2$, обусловлен суммой этих зависящих от времени поправок:

$$\begin{aligned}m_{sz} + m_{ez} &= (u_s + u_e) \cos \Omega t + (v_s + v_e) \sin \Omega t \equiv \\ &\equiv (u + iv) e^{-i\Omega t} + (u - iv) e^{i\Omega t},\end{aligned}\quad (16)$$

где $u_{s,e}$ и $v_{s,e}$ представляют собой продольные амплитуды блоховского типа.

Будем принимать далее одно из следующих двух ограничений: а) либо при произвольной расстройке частоты СВЧ-поля относительно резонансной частоты спинов будем считать частоту модуляции Ω

гораздо меньшей всех затуханий; б) либо при произвольной частоте модуляции будем рассматривать расстройки ЭПР, малые по сравнению с ширинами линий. Тогда для величин $m_{s,ez}(t)$ достаточно ограничиться дифференциальными уравнениями второго порядка. В условиях слабого насыщения ЭПР для зависящих от времени поправок получаем следующие связанные дифференциальные уравнения второго порядка:

$$\begin{aligned} \ddot{m}_{sz} + (T_s^{-1} + \omega''_\delta) \dot{m}_{sz} + \\ + [\omega''_\delta T_s^{-1} + T_{se}^{-1} T_{es}^{-1}] m_{sz} - \\ - 2T_{es}^{-1} \dot{m}_{ez} - T_{es}^{-1} (\omega''_\delta + T_e^{-1}) m_{ez} = \\ = B_s \left[\Omega \left(2\omega''_{(t)} \right)^{-1} \sin \Omega t - \cos \Omega t \right] + \\ + k_{(-t)}^{-1} B_e \left[\Omega \left(2\omega''_{(-t)} \right)^{-1} \sin \Omega t - \cos \Omega t \right] \equiv B_s(t), \quad (17) \\ \ddot{m}_{ez} + (T_e^{-1} + \omega''_\gamma) \dot{m}_{ez} + \\ + [\omega''_\gamma T_e^{-1} + T_{se}^{-1} T_{es}^{-1}] m_{ez} - \\ - 2T_{se}^{-1} \dot{m}_{sz} - T_{se}^{-1} (\omega''_\gamma + T_s^{-1}) m_{sz} = \\ = k_{(t)} B_s \left[\Omega \left(2\omega''_{(t)} \right)^{-1} \sin \Omega t - \cos \Omega t \right] + \\ + B_e \left[\Omega \left(2\omega''_{(-t)} \right)^{-1} \sin \Omega t - \cos \Omega t \right] \equiv B_e(t), \end{aligned}$$

где

$$B_s = b M_s^0 \tilde{K}_{s(t)} \pi \omega''_{(t)} g_{(t)} (\omega - \omega_0),$$

$$B_e = b M_e^0 \tilde{K}_{e(-t)} \pi \omega''_{(-t)} g_{(-t)} (\omega - \omega_0),$$

другие обозначения см. в разд. 2.

Подставляя в уравнения (17) выражение $m_{sz,ez} = \tilde{m}_{sz,ez} e^{-kt}$ и приравнивая детерминант полученного алгебраического уравнения нулю, получаем следующее секулярное уравнение для характеристических затуханий связанных зависящих от времени добавок к стационарным значениям продольных намагниченностей, обусловленных модуляцией СВЧ-мощности:

$$\begin{aligned} (k - \omega''_{(t)}) (k - \omega''_{(-t)}) \times \\ \times [k^2 - (T_s^{-1} + T_e^{-1}) k + T_s^{-1} T_e^{-1} - T_{se}^{-1} T_{es}^{-1}] = 0, \quad (18) \end{aligned}$$

решения которого имеют вид

$$k_{1,2} = \omega''_{(t),(-t)}, \quad k_{3,4} = \omega''_{(L),(-L)} \quad (19)$$

(два последних решения принадлежат уравнению, получаемому приравниванием выражения в квадратных скобках в (18) нулю). Отметим, что в величины $\omega''_{(t),(-t)}$ входят затухания поперечных компонент намагниченостей, а в величины

$\omega''_{(L),(-L)}$ — скорости релаксации продольных компонент. Если отсутствуют причины, вызывающие нарушение изотропии релаксационного поведения поперечных и продольных компонент намагниченостей, то $\omega''_t = \omega''_L$, $\omega''_{-t} = \omega''_{-L}$. Величины k_1, k_2, k_3, k_4 дают «релаксационный спектр» продольных «осцилляторов». Таким образом, сигнал продольного отклика должен иметь особенности при частотах модуляции, равных этим затуханиям. Подчеркнем, что употребление термина «осциллятор» по отношению к продольным компонентам намагниченостей оправдано тем, что в ходе экспериментов по наблюдению продольного отклика происходит периодическое изменение продольных компонент под действием периодической вынуждающей силы (модуляции СВЧ-мощности, насыщающей ЭПР).

Сейчас учтем то обстоятельство, что локализованные спины в металле, как правило, характеризуются спектральной неоднородностью. Этот факт при вычислении сигнала ЭПР связанной системы s -и e -спинов был впервые принят во внимание в работе [20]. Там каждому s -спину была приписана своя резонансная частота, а в кинетических уравнениях наряду с намагниченностью e -спинов в качестве динамической переменной выступала спектральная плотность намагниченности s -спинов. При вычислении сигнала ЭПР интегрирование проводилось по всем резонансным частотам s -спинов. Алгоритм получения спектра ЭПР, основанный на этом подходе и приведенный в [20], был использован для получения расчетных спектров в работах [7, 8]. Сравнение последних с двумя лоренцианами, на которые суммарная интенсивность ЭПР разлагалась численными методами, давало в основном хорошее согласие.

Подход работы [20] к учету неоднородного уширения является, разумеется, наиболее последовательным. Однако для расчета продольного отклика эта модель слишком громоздка, поэтому пока попытаемся учесть неоднородное уширение упрощенным способом, а именно, путем добавления неоднородной ширины к величине T_{sL}^{-1} в уравнениях (10) для поперечных компонент намагниченности (но не в уравнениях (15) для продольных компонент). Отметим, что вследствие конкуренции корринговской релаксации и распределения локализованных спинов по резонансным частотам величина эффективной неоднородной ширины в случае сильной s - e -связи (критерий см. ниже) отличается от ширины этого распределения (см. Приложение).

Величина $u + iv$, вычисленная с описанным выше учетом неоднородного уширения с помощью выражений (16) и (17) и умноженная на Ω и аппаратур-

ный фактор A , дает комплексный сигнал продольного отклика, т. е. измеряемое на концах продольной катушки напряжение

$$U + iV = A\Omega(u_s + u_e + iv_s + iv_e).$$

Оно оказывается равным

$$\begin{aligned} U + iV &= -A\Omega\pi b M_s^0 K_{s(t)} f\left(\Omega, \omega''_{(t)}, \omega''_{(L)}\right) \times \\ &\times \frac{\Omega + i\left(\omega''_{(-t)} - \delta^* k_{(t)} / (1 + k_{(t)})\right)}{\Omega + i\omega''_{(-L)}} g_{(t)}(\omega - \omega_0) - \\ &- A\Omega\pi b M_e^0 K_{e(-t)} f\left(\Omega, \omega''_{(-t)}, \omega''_{(-L)}\right) \times \\ &\times \frac{\Omega + i\left(\omega''_{(t)} - \delta^* / (1 + k_{(-t)}^{-1})\right)}{\Omega + i\omega''_{(L)}} g_{(-t)}(\omega - \omega_0), \quad (20) \end{aligned}$$

где

$$\begin{aligned} f\left(\Omega, \omega''_{(t)}, \omega''_{(L)}\right) &= \frac{\omega''_{(L)} \omega''_{(t)}^2}{\left(\Omega^2 + \omega''_{(t)}^2\right) \left(\Omega^2 + \omega''_{(L)}^2\right)} \times \\ &\times \left\{ 1 - \frac{\Omega^2 \left(\omega''_{(t)} - \omega''_{(L)}\right)}{2\omega''_{(L)} \omega''_{(t)}^2} + \frac{i\Omega}{\omega''_{(L)}} \times \right. \\ &\left. \times \left[1 + \frac{\omega''_{(L)}}{2\omega''_{(t)}} \left(1 + \frac{\Omega^2}{\omega''_{(L)} \omega''_{(t)}} \right) \right] \right\}. \quad (21) \end{aligned}$$

Формула (20) является главным результатом настоящей работы, ее получение осуществляет поставленную цель. Этот результат справедлив при любой связанности s - и e -спинов и является точным в рамках принятых ограничений на малость расстроек и (или) малость частоты модуляции по сравнению с затуханиями.

Отметим, что при $\Omega \ll \omega''_{(t)}, \omega''_{(L)}$, когда результат (20) справедлив при любых расстройках, выражение (21) упрощается:

$$f\left(\Omega, \omega''_{(t)}, \omega''_{(L)}\right) \approx \frac{1}{\omega''_{(L)}} \left[1 + \frac{i\Omega}{\omega''_{(L)}} \left(1 + \frac{\omega''_{(L)}}{2\omega''_{(t)}} \right) \right]. \quad (22)$$

При отсутствии неоднородного уширения в выражении (20) следует учесть автоматически выполняющееся равенство $\omega''_{(\pm t)} = \omega''_{(\pm L)}$; кроме того, дроби в каждом из двух слагаемых в (20) обращаются в единицу. Отметим также, что при полном отсутствии связи как сигнал ЭПР, так и сигнал продольного отклика есть сумма вкладов индивидуальных s - и e -спинов, причем эти вклады равны соответствующим выражениям для случая одного сорта спинов [3, 8].

Проанализируем полученный результат на примере перехода металл–диэлектрик в полимерной линейной фазе фуллерита RbC_{60} [3, 7, 8]. Как показано в [7], этот переход, происходящий при охлаждении материала ниже $T_c = 55$ К, сопровождается резким ослаблением релаксационной связи между спиновой подсистемой локализованных парамагнитных центров, образованных оборванными полимерными связями (s -спины) и электронами проводимости (e -спины). В результате происходит переход от ситуации «релаксационного узкого горла» [11] ($T > 55$ К) к промежуточной s - e -связи ($T < 55$ К) и, наконец, к изолированным спиновым подсистемам при еще более низких температурах. Количественной характеристикой связи s - и e -подсистем является параметр «связанность» [17], который в нашем случае релаксационно связанных осцилляторов можно определить следующим образом:

$$\sigma = \frac{T_{se}^{-1} + T_{es}^{-1}}{|\delta^* + T_{sL}^{-1} - T_{eL}^{-1}|}, \quad (23)$$

где δ^* — эффективная ширина распределения локализованных спинов по резонансным частотам (см. дальше). Как видно из (23), параметр σ определяется отношением величины, характеризующей связь двух сортов спинов, к разности их парциальных затуханий без связи.

Рассмотрим случай, когда для продольных компонент намагниченностей связанность слабая, т. е. $\sigma \ll 1$. В этом случае фигурирующая в поперечных нормальных затуханиях неоднородная ширина δ^* совпадает с шириной δ_s^0 распределения s -спинов по резонансным частотам (см. Приложение). Тогда, предполагая, что $T_{eL}^{-1} < \delta_s^0 + T_{sL}^{-1}$, получаем для нормальных затуханий ЭПР выражения

$$\begin{aligned} \omega''_{(t=+)} &\approx T_{se}^{-1} + T_{sL}^{-1} + \delta_s^0 + \frac{\sigma}{4} (T_{es}^{-1} + T_{se}^{-1}), \\ \omega''_{(-t=-)} &\approx T_{es}^{-1} + T_{eL}^{-1} - \frac{\sigma}{4} (T_{es}^{-1} + T_{se}^{-1}) \end{aligned} \quad (24)$$

(нормальные продольные затухания получаются из (24), если положить в последних $\delta_s^0 = 0$).

Сигнал ЭПР равен сумме двух слагаемых:

$$\begin{aligned} \chi''_{ESR} &\approx \frac{\pi g \mu_B}{\hbar} M_s^0 \left(1 - \frac{\sigma}{4} \frac{\chi_s + \chi_e}{\chi_s} \right)^2 \times \\ &\times g_{(t=+)}(\omega - \omega_0) + \\ &+ \frac{\pi g \mu_B}{\hbar} M_e^0 \left(1 + \frac{\sigma}{4} \frac{\chi_s + \chi_e}{\chi_e} \right)^2 \times \\ &\times g_{(-t=-)}(\omega - \omega_0). \quad (25) \end{aligned}$$

Каждое слагаемое пропорционально а) равновесной намагниченности того сорта спинов, от которого это слагаемое ведет свое происхождение; б) лоренциану, характеризующему соответствующим нормальным затуханием (шириной линии ЭПР); в) множителям, включающим в себя полную информацию о влиянии другого сорта спинов на амплитуду наблюдаемого.

Сигнал продольного отклика приближенно равен

$$\begin{aligned} U + iV \approx & -A\Omega\pi b M_s^0 \left(1 - \frac{\sigma}{4} \frac{\chi_s + \chi_e}{\chi_s}\right)^2 \times \\ & \times f\left(\Omega, \omega''_{(t=+)} \omega''_{(L=+)}\right) g_{(t=+)}(\omega - \omega_0) - \\ & - A\Omega\pi b M_e^0 \left(1 + \frac{\sigma}{4} \frac{\chi_s + \chi_e}{\chi_e}\right)^2 \times \\ & \times f\left(\Omega, \omega''_{(t=-)} \omega''_{(-L=-)}\right) g_{(-t=-)}(\omega - \omega_0). \quad (26) \end{aligned}$$

При еще более низких температурах возможен случай, когда e -спины столь быстро релаксируют к решетке, что в каждый момент времени обладают равновесной намагниченностью (этот случай в литературе называется изотермическим [9]), и эволюционируют только s -спины со своими парциальными затуханиями. В этом случае сигнал продольного отклика определяется первым членом в (26) с $\sigma = 0$.

Если связанность сильная, т. е. $\sigma \gg 1$ (в другой терминологии, если имеет место эффект сильного релаксационного узкого горла [11]), что характерно для температур выше T_c [7], то нормальные затухания поперечных медленных амплитуд приближенно равны

$$\begin{aligned} \omega''_{(t=+)} \approx & \\ \approx & T_{se}^{-1} + T_{es}^{-1} + \frac{\chi_e T_{sL}^{-1} + \chi_s T_{eL}^{-1}}{\chi_s + \chi_e} + \frac{\chi_e}{\chi_s + \chi_e} \delta^*, \quad (27) \\ \omega''_{(-t=-)} \approx & \frac{\chi_s T_{sL}^{-1} + \chi_e T_{eL}^{-1}}{\chi_s + \chi_e} + \frac{\chi_s}{\chi_s + \chi_e} \delta_s^0, \end{aligned}$$

где эффективная неоднородная ширина δ^* , фигурирующая в нормальном затухании s -подобной моды, связана с шириной распределения s -спинов по спиновым пакетам соотношением (см. (П.10) в Приложении)

$$\delta^* \sim \frac{(\delta_s^0)^2}{T_{se}^{-1}}.$$

Из сравнения выражений (27) с парциальными затуханиями видно, что при сильной связанности большее нормальное затухание значительно превосходит большее парциальное, а меньшее нормальное затухание гораздо меньше меньшего парциального затуха-

ния¹⁾. В случае сильной связанности наблюдается узкая линия ЭПР, которая соответствует «слабой» моде, ведущей свое происхождение от сорта спинов с меньшим парциальным затуханием. В результате действия $s-e$ -связи ширина линии ЭПР этой моды становится еще меньше, а амплитуда возрастает. У второй, «сильной», моды, ведущей свое происхождение от сорта спинов с большим парциальным затуханием, амплитуда сильно ослабляется $s-e$ -связью, поэтому эта мода не наблюдается. Поскольку

$$K_{weak} \approx \frac{\chi_{strong} + \chi_{weak}}{\chi_{weak}},$$

независимо от того, какая из индивидуальных спиновых систем обладает меньшим парциальным затуханием, сигнал ЭПР поступает от объединенных равновесных намагниченностей и имеет форму линии узкой поперечной моды:

$$\chi''_{ESR} \approx \frac{\pi}{2\hbar} g\mu_B (M_s^0 + M_e^0) g_- (\omega - \omega_0). \quad (28)$$

Аналогичное объединение намагниченностей в узкой линии происходит и в сигнале продольного отклика (при вычислении сигнала продольного отклика принято, что выполняется неравенство $\delta^* \ll T_{es}^{-1}$, согласующееся с условием наличия эффекта релаксационного узкого горла ($\sigma \gg 1$) при неоднородном уширении):

$$\begin{aligned} U + iV \approx & -A\Omega\pi b (M_e^0 + M_s^0) \times \\ & \times f\left(\Omega, \omega''_{(-t=-)} \omega''_{(-L=-)}\right) g_{(-t=-)}(\omega - \omega_0). \quad (29) \end{aligned}$$

С помощью формул (28), (29) легко найти экспериментально измеряемые в методиках работ [4, 7–10] отношения (выпишем их для случая малых частот модуляции)

$$\begin{aligned} \frac{V}{U} \approx & \frac{\Omega}{\omega''_{(-L=-)}} \left(1 + \frac{\omega''_{(-L=-)}}{2\omega''_{(-t=-)}}\right), \\ \frac{U}{\chi''_{ESR}} \approx & -\frac{2Ab\hbar}{g\mu_B} \frac{\Omega}{\omega''_{(-L=-)}}. \end{aligned} \quad (30)$$

Отметим, что в экспериментах с фуллеридом [7–10] подавляющий вклад в интегральную интенсивность ЭПР давала узкая и усиленная e -подобная мода. Величина и температурная зависимость ее ширины вполне соответствуют узкому нормальному затуханию, получаемому из (7) как

¹⁾ Эта ситуация аналогична наличию большого динамического сдвига частоты ЯМР в магнетиках, подробно исследованного в работах [21].

выше, так и ниже T_c , что подтверждается проведенными нами компьютерными расчетами для конкретной ситуации фуллерена. Отсюда следует, что и характерное время, измеряемое по отношению V/U (30) для узкой линии, является нормальным затуханием узкого e -подобного «продольного осциллятора» (эффективным временем T_1 для e -спинов).

Для промежуточного случая связанности при вычислении сигналов продольного отклика необходимо пользоваться общими формулами (20).

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В данной работе для образцов, содержащих локализованные ($S = 1/2$) и делокализованные спины с чисто релаксационной связью между ними, вычислены как сигнал ЭПР, так и продольный отклик (регистрируемый продольной катушкой) на модуляцию СВЧ-мощности, насыщающей ЭПР. Сигнал ЭПР аналитически разложен на два лоренциана с нормальными затуханиями релаксационно связанных поперечных компонент намагниченостей. Выведены уравнения для соответствующих модовых переменных, дополненные уравнениями для индивидуальных продольных компонент намагниченостей. Эти уравнения позволяют описывать эффект насыщения в связанной системе s - и e -спинов.

Выведены уравнения для продольных связанных «релаксационных осцилляторов», находящихся как под внешним низкочастотным периодическим воздействием (модуляция фактора насыщения), так и под действием естественных релаксационных процессов. Сигналы продольного отклика аналитически разложены на две части, имеющие происхождение от s - и e -спинов и пропорциональные каждая форм-фактору одной из мод (s - или e -подобной). Сигналы продольного отклика проанализированы в различных случаях связанности s - e -спинов. Учтена роль неоднородного уширения s -спинов.

Проведенное качественное сравнение дает хорошее согласие с экспериментальными данными работ [7–10] по ЭПР и продольному отклику.

В заключение авторы выражают глубокую признательность В. А. Ацаркину за многочисленные стимулирующие дискуссии и ценные замечания. Авторы благодарны также М. Элизбарашвили за помощь в проведении компьютерных расчетов и ряда аналитических вычислений. Выполнение работы поддержано Швейцарским национальным научным фондом (грант № 7GEPJ062429).

ПРИЛОЖЕНИЕ

Исследуем более детально вопрос о роли неоднородного уширения спектра ЭПР s -спинов, которое может быть связано с микроскопическими неоднородностями кристаллической структуры, сверхтонкими полями соседних ядер и т. п. Примем во внимание, что вызванное этими причинами распределение резонансных частот s -спинов ведет к разрушению корреляций их ларморовской прецессии, тогда как релаксация по механизму Корринги способствует этой корреляции. Поэтому вопрос о добавляемой величине, характеризующей неоднородное уширение, требует особого рассмотрения. Это рассмотрение проведем методом релаксационной функции Кубо–Томиты [22] аналогично вычислениям в работе [23]. Для исследования результатов указанной выше конкуренции e -спины считаем термостатом, а полную намагниченность s -спинов представим в виде

$$M_s^+ = \sum_n \rho_n M_{sn}^+,$$

где M_{sn}^+ — намагниченность совокупности s -спинов, скоррелированных корринговским механизмом релаксации, ρ_n — плотность распределения намагниченности по таким группам. Будем считать распределение равномерным; тогда $\rho_n = N^{-1}$, где N — число групп. Уравнение движения для M_{sn}^+ имеет вид

$$\dot{M}_{sn}^+ = -i\omega_n M_{sn}^+ - \sum_{n'} k_{nn'} M_{sn'}^+, \quad (\text{II.1})$$

где $\omega_n = \omega'_n + i\omega''_n$ — комплексная частота прецессии M_{sn}^+ , мнимая часть которой в изотермическом случае представляет собой корринговскую скорость релаксации T_{se}^{-1} , а ширина распределения спин-пакетов, δ_s^0 , рассматривается как источник флуктуаций; $k_{nn'}$ — кинетические коэффициенты, которые при сделанных предположениях имеют вид

$$k_{nn'} = \delta_s^0 / N.$$

Корреляционная функция дается выражением [23]

$$\Phi_n(t) = \frac{\langle \tilde{M}_{sn}^+(t) \tilde{M}_{sn}^-(0) \rangle}{\langle \tilde{M}_{sn}^+(0) \tilde{M}_{sn}^-(0) \rangle}, \quad (\text{II.2})$$

где

$$\tilde{M}_{sn}^+ = M_{sn}^+ \exp(i\omega_n t), \quad (\text{II.3})$$

а угловые скобки означают равновесное среднее. Интегрирование уравнения (П.1) дает

$$\begin{aligned} \langle \tilde{M}_{sn}^+(t) \tilde{M}_{sn}^-(0) \rangle &= \langle \tilde{M}_{sn}^+(0) \tilde{M}_{sn}^-(0) \rangle - \\ &- \frac{\delta_s^0}{N} \sum_{n'} \int_0^t dt' \exp [i(\omega_n - \omega_{n'})t'] \times \\ &\times \langle \tilde{M}_{sn'}^+(t') \tilde{M}_{sn'}^-(0) \rangle. \end{aligned} \quad (\text{П.4})$$

Итерация выражения (П.4) по δ_s^0/T_{se}^{-1} до второго порядка включительно приводит к следующему результату:

$$\begin{aligned} \Phi_n(t) &\approx \\ &\approx 1 + \frac{(\delta_s^0)^2}{N} \sum_{n'} \int_0^t dt' \int_0^{t'} dt'' \exp [i(\omega_n - \omega_{n'})(t' - t'')] \end{aligned} \quad (\text{П.5})$$

или к равносильному выражению

$$\begin{aligned} \Phi_n(t) &\approx \\ &\approx 1 + \frac{(\delta_s^0)^2}{N} \sum_{n'} \int_0^t d\tau (t - \tau) \exp [i(\omega_n - \omega_{n'})\tau], \end{aligned} \quad (\text{П.6})$$

которое на бесконечно малых временах сводится к

$$\Phi_n(t) = 1 - \frac{1}{2}(\delta_s^0)^2 t^2. \quad (\text{П.7})$$

На конечных временах, гораздо меньших $(\delta_s^0)^{-1}$, выражение (П.7) является хорошим приближением, если $|\omega_n - \omega_{n'}|t \ll 1$. Поскольку

$$|\omega'_n - \omega'_{n'}|_{max} \sim \delta_s^0, \quad |\omega''_n - \omega''_{n'}|_{max} \sim T_{se}^{-1},$$

выражение (П.7) справедливо при $T_{se}^{-1} \ll \delta_s^0$. Так как выполнение этого неравенства способствует выполнению условия слабой связи, очевидно, что при слабой связи неоднородная ширина совпадает с квадратным корнем из второго момента распределения s -спинов по пакетам, т. е. с δ_s^0 .

С другой стороны, из нестационарной теории возмущений известно, что на больших временах поведение релаксационной функции экспоненциально с таким временем корреляции η_n^{-1} , что $\eta_n t \ll 1$, поэтому приближенно можно записать

$$\Phi_n(t) \approx 1 - \eta_n t. \quad (\text{П.8})$$

Такое поведение следует из (П.6) при выполнении неравенства $T_{se}^{-1} \gg \delta_s^0$ на больших временах (в дан-

ном случае $t \sim (\delta_s^0)^{-1} \gg T_{se}$). Соответствующее значение η_n , получаемое при взятии интеграла в (П.6), определяется выражением

$$\eta_n \approx \frac{(\delta_s^0)^2}{N} \sum_{n'} \frac{1}{\omega''_n - \omega''_{n'}}, \quad (\text{П.9})$$

что приводит к следующей оценке эффективной неоднородной ширины s -спинов в условиях существования эффекта релаксационного узкого горла (которые совместимы с условием $T_{se}^{-1} \gg \delta_s^0$):

$$\delta^* \sim (\delta_s^0)^2 / T_{se}^{-1}. \quad (\text{П.10})$$

Отметим, что это выражение получено с помощью рассуждений, аналогичных тем, которыми пользовались авторы работы [24] для вывода эффективной неоднородной ширины ядерных спинов при наличии как ядерных спиновых волн, так и динамического сдвига частоты ЯМР, значительно превышающего микронеоднородности локальных полей на ядрах. В отличие от ситуации, обсужденной в работах [23–25], в данном рассмотрении роль динамического сдвига частоты играет величина T_{se}^{-1} . Нам представляется, что именно величина (П.10) определяет эффективную ширину неоднородно уширенной линии, добавляемую к T_{sL}^{-1} в выражении для ширины s -подобной моды при эффекте релаксационного узкого горла. Необходимо отметить, что эта величина совпадает с результатом работ [4, 20], полученным в таких же условиях другими методами (см. разд. 3).

ЛИТЕРАТУРА

1. F. Bommeli, L. Degiorgi, P. Wachter et al., Phys. Rev. B **51**, 14794 (1995).
2. V. Brouet, H. Alloul, Y. Yoshinari, and L. Forro, Phys. Rev. Lett. **76**, 3638 (1996).
3. O. Chauvet, G. Oszlanyi, L. Forro et al., Phys. Rev. Lett. **72**, 2721 (1994).
4. В. А. Апаркин, Г. А. Васнева, В. В. Демидов, ЖЭТФ **108**, 927 (1995).
5. J. Herve and J. Pescia, C. R., Paris **251**, 665 (1960).
6. J. Pescia, Ann. de Phys. **10**, 389 (1965).
7. V. A. Atsarkin, V. V. Demidov, and G. A. Vasneva, Phys. Rev. B **56**, 9448 (1997).
8. В. А. Апаркин, В. В. Демидов, ЖЭТФ **113**, 1048 (1998).

9. V. A. Atsarkin, V. V. Demidov, and G. A. Vasneva, *Appl. Magn. Res.* **15**, 323 (1998).
10. V. A. Atsarkin, V. V. Demidov, G. A. Vasneva, and K. Conder, *Phys. Rev. B* **63**, 092405 (2001).
11. S. E. Barnes, *Adv. Phys.* **30**, 801 (1981).
12. T. Plefka, *Phys. Stat. Sol. (b)* **55**, 129 (1973).
13. N. P. Fokina and K. O. Khutsishvili, *Appl. Magn. Res.* **17**, 503 (1999).
14. M. B. Walker, *Phys. Rev. B* **7**, 2920 (1973).
15. Н. Н. Боголюбов, Ю. А. Митропольский, *Асимптотические методы в теории нелинейных колебаний*, Наука, Москва (1974), § 1.
16. М. И. Рабинович, Д. Н. Трубецков, *Введение в теорию колебаний и волн*, Наука, Москва (1984), с. 85.
17. В. В. Мигулин, В. И. Медведев, Е. Р. Мустель, В. Н. Парыгин, *Основы теории колебаний*, Наука, Москва (1978), с. 245.
18. Е. А. Туров, М. П. Петров, *Ядерный магнитный резонанс в ферро- и антиферромагнетиках*, Наука, Москва (1960), гл. III.
19. А. Абрагам, *Ядерный магнетизм*, Изд-во иностр. лит., Москва (1963), с. 49.
20. Л. Р. Тагиров, К. Ф. Трутнев, *ЖЭТФ* **86**, 1092 (1984).
21. Т. Г. Вардосанидзе, К. О. Хуцишвили, *ФТТ* **26**, 941, 955 (1984).
22. R. Kubo and K. Tomita, *J. Phys. Soc. Jap.* **9**, 888 (1954).
23. P. Richards, *Phys. Rev.* **173**, ser. 2, 581 (1968).
24. М. И. Куркин, Е. А. Туров, *ЯМР в магнитоупорядоченных веществах и его применения*, Наука, Москва (1990), с. 152.
25. Т. Г. Вардосанидзе, К. О. Хуцишвили, *Физ. мет. металловед.* **53**, 1065 (1982).