ДОКЛАДЫ РОССИЙСКОЙ АКАДЕМИИ НАУК. ФИЗИКА, ТЕХНИЧЕСКИЕ НАУКИ, 2021, том 499, с. 3–7

ФИЗИКА

УДК 538.955

ЭЛЕКТРОННЫЙ ПАРАМАГНИТНЫЙ РЕЗОНАНС И МОДИФИЦИРОВАННОЕ УРАВНЕНИЕ ЛАНДАУ–ЛИФШИЦА В СИЛЬНО КОРРЕЛИРОВАННЫХ ЭЛЕКТРОННЫХ СИСТЕМАХ С КВАНТОВЫМИ ФЛУКТУАЦИЯМИ МАГНИТНОГО МОМЕНТА

 С. В. Демишев[1,2,*]

Представлено академиком РАН И.А. Щербаковым 31.05.2021 г.
Поступило 31.05.2021 г.
После доработки 31.05.2021 г.
Принято к публикации 03.06.2021 г.

Предложено модифицированное квантовыми флуктуациями магнитного момента уравнение Ландау–Лифшица, на основании которого предсказан ряд новых эффектов в электронном парамагнитном резонансе в сильно коррелированных электронных системах, в том числе увеличение интегральной интенсивности и появление универсальных соотношений, связывающие вклад в ширину линии, сдвиг поля резонанса и интегральную интенсивность. Ожидается, что величина квантовых поправок будет зависеть от единственного безразмерного параметра $\sim 2\Delta M_z^2/\mu_B M_0$, где ΔM_z и M_0 – амплитуда флуктуаций и среднее значение магнитного момента в расчете на магнитный ион соответственно.

Ключевые слова: электронный парамагнитный резонанс, сильно коррелированные электронные системы, квантовые флуктуации магнитного момента, соотношения неопределенности Гейзенберга, уравнение Ландау–Лифшица, универсальные соотношения между шириной линии, *g*-фактором и интегральной интенсивностью

DOI: 10.31857/S2686740021040064

В физике различных сильно коррелированных электронных систем (СКЭС) важную роль играют спиновые (магнитные) флуктуации, влияющие на статические и динамические магнитные свойства, а также на электронный транспорт [1]. Строгое теоретическое описание электронного парамагнитного резонанса (ЭПР) с учетом специфики СКЭС известно лишь для ограниченного числа случаев [2–5], и, как правило, анализ экспериментальных данных проводится в рамках квазиклассической спиновой динамики, описываемой стандартным уравнением Ландау–Лифшица (ЛЛ) [6]. При этом спиновые флуктуации включаются в рассмотрении лишь на качественном уровне [6]. В настоящей работе предложен вариант количественного учета влияния спиновых флуктуаций на описание магнитного резонанса с помощью уравнения ЛЛ в различных СКЭС.

[1] *Институт общей физики им. А.М. Прохорова Российской академии наук, Москва, Россия*
[2] *Национальный исследовательский университет "Высшая школа экономики", Москва, Россия*
**E-mail: demis@lt.gpi.ru*

1. МОДИФИКАЦИЯ УРАВНЕНИЯ ЛАНДАУ–ЛИФШИЦА КВАНТОВЫМИ ФЛУКТУАЦИЯМИ МАГНИТНОГО МОМЕНТА

В качестве отправной точки рассмотрим квазиклассическую систему, динамика которой описывается уравнением ЛЛ, когда магнитный момент M вращается вокруг магнитного поля H с частотой $\omega_H = \gamma H$, зависящей от гиромагнитного отношения γ (рис. 1). В системе с сильными взаимодействиями указанная картина будет модифицироваться сильными магнитными флуктуациями, в результате которых траектория конца вектора $\mathbf{M}$ будет иметь сложный случайный характер (рис. 1). Уширение траектории определяется флуктуациями магнитного момента ΔM, которые могут быть сопоставлены флуктуациям магнитного поля $\Delta M = \left(\frac{\partial M_0}{\partial H}\right) \cdot \Delta H$. В свою очередь, флуктуации поля ΔH будут пропорциональны ширине линии, причем коэффициент пропорциональности будет зависеть от формы линии. Такой подход, очевидно, не зависит от конкретного механизма спиновой релаксации, нарушающего когерентность

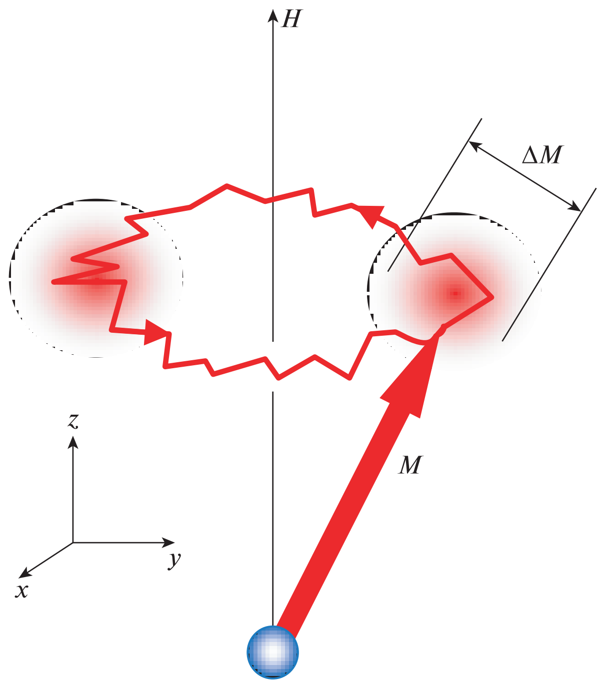

Рис. 1. Движение магнитного момента (M) во внешнем магнитном поле (H) в присутствии спиновых флуктуаций. Траектория конца вектора **M** имеет случайный характер и находится в пространственной области, соответствующей размытию ΔM.

вращения спина и приводящего к флуктуациям ΔM. При этом не ясно, как именно спиновые флуктуации можно включить в релаксационный член, и в результате связь ширины линии ЭПР и флуктуаций остается на качественном уровне. Отметим, что рассмотрение лишь флуктуаций магнитного момента не приведет к изменению резонансной частоты (или g-фактора), поскольку для небольших отклонений от равновесия, характерных для ЭПР-экспериментов, частота вращения не зависит от величины M.

Ситуация существенно изменяется, если флуктуации намагниченности имеют квантовую природу. Для описания квантовых флуктуаций можно использовать соотношения неопределенности Гейзенберга. Поскольку мы рассматриваем квазиклассическую систему, гейзенберговские неравенства должны соответствовать минимальному значению произведения неопределенностей и вырождаются в равенства [7–9].

В квазиклассическом пределе соотношение неопределенностей для физической величины φ имеет вид [8]

$$\Delta E \cdot \Delta\varphi = \hbar\frac{\partial\varphi}{\partial t}, \tag{1}$$

где ΔE – неопределенность энергии рассматриваемой системы E. Если φ – угол вращения вокруг магнитного поля, то

$$\Delta E \cdot \Delta\varphi = \hbar\omega. \tag{2}$$

Неопределенность угла $\Delta\varphi$ связана с неопределенностью связанного механического момента L [8]:

$$\Delta L \cdot \Delta\varphi = \frac{\hbar}{2}. \tag{3}$$

В геометрии рис. 1 система вращается вокруг оси z и, следовательно, ΔL соответствует неопределенности z-компоненты механического момента. Умножая обе части (3) на $e/2mc$, находим связь между неопределенностями магнитного момента и угла:

$$\Delta M_z \cdot \Delta\varphi = \frac{\mu_B}{2}. \tag{4}$$

Здесь e и m обозначают заряд и массу электрона и c – скорость света. Исключая $\Delta\varphi$ из (4) и (2), с учетом $\Delta E = \hbar\Delta\omega$ находим

$$\frac{\Delta\omega}{\omega} = \frac{2\Delta M_z}{\mu_B}. \tag{5}$$

(здесь и далее магнитный момент и его флуктуации рассматриваются в расчете на один магнитный ион). Таким образом, в случае квантовых флуктуаций неопределенности частоты вращения и магнитного момента оказываются пропорциональны друг другу и флуктуации намагниченности ΔM и частоты $\Delta\omega$ будут связаны между собой, в результате чего коррелятор $\langle\Delta\omega\Delta M_z\rangle$ будет отличен от нуля.

Рассмотрим теперь вид усредненного уравнения ЛЛ в присутствии квантовых флуктуаций. Примем, что векторы **M** и **H** имеют вид

$$\mathbf{M} = M_0\mathbf{k} + \mathbf{m}(t) + \Delta\mathbf{M},$$

$$\mathbf{H} = H_0\mathbf{k} + \mathbf{h}.$$

Здесь M_0 обозначает величину магнитного момента в постоянном внешнем магнитном поле H_0, направленном вдоль оси z; вектор $\mathbf{m}(t)$ соответствует усредненной осциллирующей намагниченности и $\mathbf{h} \sim \exp(-i\omega \cdot t)$ – переменное магнитное поле, возбуждающее магнитные колебания. В геометрии ЭПР векторы **m** и **h** ортогональны **k** и находятся в плоскости x–y. В уравнении ЛЛ

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = \gamma[\mathbf{M},\mathbf{H}] - \frac{\alpha\gamma}{M_0}[\mathbf{M},[\mathbf{M},\mathbf{H}]] \tag{6}$$

флуктуации частоты учтем путем замены $\gamma \to \gamma + \Delta\gamma$, где $\Delta\gamma$ соответствует флуктуациям гиромагнитного отношения, имеющим квантовую природу. Из предыдущего анализа следует, что $\langle\Delta\gamma\Delta\mathbf{M}\rangle = \langle\Delta\gamma\Delta M_z\rangle\mathbf{k}$. В силу условия $m \ll M_0$ примем, что

1) ΔM_x, $\Delta M_y \ll \Delta M_z$, поскольку флуктуации магнитного момента в плоскости $x - y$ соответствуют флуктуациям малой осциллирующей части намагниченности,

2) корреляторы $\langle \Delta M_x \Delta M_z \rangle$, $\langle \Delta M_y \Delta M_z \rangle$ и $\langle \Delta M_x \Delta M_y \rangle$ равны нулю.

Далее ограничимся линеаризованным вариантом уравнения ЛЛ, когда членами $\sim h^2$ можно пренебречь, а зависимость релаксационного члена от переменной компоненты магнитного поля не учитывается. При усреднении учтем, что $\langle \Delta\gamma \rangle = 0$ и $\langle \Delta\mathbf{M} \rangle = 0$. Тогда уравнение ЛЛ для компонент усредненной осциллирующей части намагниченности принимает вид системы из двух уравнений:

$$\begin{aligned} \frac{dm_x}{dt} &= \gamma H_0 m_y - \gamma M_0(1+a)h_y - \nu \cdot m_x(1+a), \\ \frac{dm_y}{dt} &= -\gamma H_0 m_x + \gamma M_0(1+a)h_x - \nu \cdot m_y(1+a), \end{aligned} \tag{7}$$

где параметр $a = \langle \Delta\gamma \Delta M_z \rangle / \gamma M_0$ определяет поправку, обусловленную квантовыми флуктуациями магнитного момента, и $\nu \approx \alpha\gamma H_{res}$ – частота релаксации, соответствующая полю магнитного резонанса H_{res}. Интересно, что квантовые флуктуации привели не только к перенормировке релаксационного члена, как и ожидалось из вышеприведенного качественного рассмотрения, но и повлияли на параметр, задающий влияние переменного магнитного поля. При этом собственная частота спиновой прецессии $\omega_H = \gamma H_0$ не зависит от флуктуаций.

Система (7) легко решается методом комплексных амплитуд, в рамках которого форма линии ЭПР будет определяться поглощенной мощностью $P \sim \mathrm{Im}\{\mathbf{m} \cdot \mathbf{h}^*\}$ [10]. Несложно показать, что

$$\begin{aligned} P \sim \mathrm{Im}\{\mathbf{m} \cdot \mathbf{h}^*\} = \chi(1+a)h_0^2 \times \\ \times \frac{2\omega_H \omega\nu(1+a)}{[\omega_H^2 - \omega^2 + \nu^2(1+a)^2]^2 + 4\omega^2\nu^2(1+a)^2}. \end{aligned} \tag{8}$$

Здесь $\chi = M_0/H_0$, $h_0^2 = h_x^2 + h_y^2$ и ω – квадрат амплитуды переменного магнитного поля и его частота соответственно. Если пренебречь сдвигом резонансной частоты, обусловленным релаксацией, то формула (8) приводится к лоренцевскому виду

$$\begin{aligned} P \sim \mathrm{Im}\{\mathbf{m} \cdot \mathbf{h}^*\} = \frac{1}{2}\chi(1+a)h_0^2 \times \\ \times \frac{\omega\nu(1+a)}{(\omega_H - \omega)^2 + \nu^2(1+a)^2}. \end{aligned} \tag{9}$$

2. ФИЗИЧЕСКИЕ СЛЕДСТВИЯ

Рассмотрим некоторые следствия найденного решения. Из формул (8) и (9) видно, что максимальная амплитуда поглощения $P \sim \frac{1}{2}\chi \cdot h_0^2 \frac{\omega}{\nu}$ и не зависит от влияния квантовых флуктуаций, в то время как флуктуационный вклад будет влиять на интегральную интенсивность. С помощью формулы (9) легко показать, что интегральная интенсивность

$$I = \int P d\omega_H \sim \int \mathrm{Im}\{\mathbf{m} \cdot \mathbf{h}^*\} d\omega_H = \frac{\pi}{2}\chi(1+a)h_0^2\omega \tag{10}$$

увеличивается в $1 + a$ раз и относительное изменение интегральной интенсивности, вызванное квантовыми флуктуациями, будет равно $\Delta I_{QF}/I = a$. Как следует из формулы (5), величина a может быть оценена как $a \sim 2\Delta M_x^2/\mu_B M_0$. Поскольку интегральная интенсивность часто интерпретируется как магнитная восприимчивость или осциллирующая часть намагниченности, то квантовые флуктуации приведут к кажущемуся росту этих параметров, рассчитанных из ЭПР-экспериментов. В результате “кажущаяся” осциллирующая часть намагниченности может оказаться даже больше статической. Именно такое поведение наблюдалось в гексабориде церия CeB_6 при $T \sim 2.5$ K для кристаллографического направления [100], которое характеризуется наиболее сильными спиновыми флуктуациями с амплитудой, увеличивающейся при понижении температуры [11]. Отметим, что указанный эффект не имел до настоящей работы удовлетворительного объяснения.

Из формулы (8) следует, что поле резонанса может быть оценено из условия $\omega_H^2 - \omega^2 + \nu^2(1+a)^2 \approx 0$, а для ширины линии можно использовать выражение $\nu(1 + a)$. Поскольку в оба выражения входит одна и та же величина $a = \langle \Delta\gamma \Delta M_z \rangle / \gamma M_0$, сдвиг поля резонанса δH_{QF} и вклад в ширину линии ΔH_{QF}, обусловленные квантовыми флуктуациями, будут связаны некоторыми универсальными соотношениями. Действительно, из (8) находим

$$\delta H_{QF} \approx -\frac{\nu^2}{\omega\gamma}a; \quad \Delta H_{QF} \approx \frac{\nu}{\gamma}a. \tag{11}$$

Из (11) вытекают два возможных универсальных соотношения между шириной линии и сдвигом частоты

$$\frac{\Delta H_{QF}}{\delta H_{QF}} \approx -\frac{\omega}{\nu}, \tag{12}$$

$$\frac{\Delta H_{QF}^2}{\delta H_{QF}} \approx -a\omega^2\gamma, \tag{13}$$

первое из которых не зависит от квантовых флуктуаций, а второе – не зависит от частоты релаксации. Формулу (13) можно использовать для оценки ожидаемой величины квантовых флуктуационных эффектов, характерных для СКЭС в ЭПР-экспериментах. Для этого удобно перейти от сдвига частоты к относительному изменению g-фактора: $\Delta g_{QF}/g \approx a\nu^2/\omega^2$ и рассмотреть ширину линии ЭПР, отнесенную к полю резонанса $\Delta H_{QF}/H_{res} \approx \Delta H_{QF}\gamma/\omega$. Тогда (13) преобразуется к виду

$$\frac{(\Delta H_{QF}/H_{res})^2}{\Delta g_{QF}/g} \approx a \sim \frac{2\Delta M_z^2}{\mu_B M_0}. \quad (14)$$

С учетом формулы (10) можно найти общую связь между шириной линии, g-фактором и интегральной интенсивностью в исследуемом случае:

$$\frac{(\Delta H_{QF}/H_{res})^2}{\Delta g_{QF}/g} \approx \frac{\Delta I_{QF}}{I}. \quad (15)$$

Отметим, что из литературы известны некоторые соотношения, связывающие между собой изменение g-фактора и ширину линии ЭПР [12, 13], однако они существенно отличаются от формул (12)–(15), полученных в настоящей работе.

Интересно также рассмотреть случай сильных квантовых флуктуаций, когда $\Delta M_z \sim \mu_B$. Тогда с точностью до численного коэффициента отношения $\frac{(\Delta H_{QF}/H_{res})^2}{\Delta g_{QF}/g}$ и $\frac{\Delta I_{QF}}{I}$ будут порядка $\sim\mu_B/M_0 \sim \sim 1/\langle S_z(H_{res})\rangle$, где $\langle S_z\rangle$ – средняя спиновая поляризация СКЭС в поле магнитного резонанса. Таким образом, для выделения вклада в ЭПР, обусловленного квантовыми флуктуациями, в некоторых случаях может оказаться полезным исследование частотных зависимостей ширины линии, g-фактора и интегральной интенсивности.

ВЫВОДЫ

Предложенное в настоящей работе модифицированное квантовыми флуктуациями магнитного момента уравнение Ландау–Лифшица предсказывает ряд новых эффектов в ЭПР сильно коррелированных электронных систем, в частности, увеличение интегральной интенсивности и появление универсальных соотношений, связывающие вклад в ширину линии, сдвиг поля резонанса и интегральную интенсивность. Ожидается, что величина квантовых поправок будет зависеть от единственного безразмерного параметра $\sim 2\Delta M_z^2/\mu_B M_0$, где ΔM_z и M_0 – амплитуда флуктуаций и среднее значение магнитного момента в расчете на магнитный ион соответственно.

БЛАГОДАРНОСТИ

Автор признателен В.Н. Рыжову за полезные обсуждения.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Moriya T.* Spin Fluctuations in Itinerant Electron Magnetism. Berlin: Springer-Verlag, 1985. 239 p.
2. *Oshikawa M., Affleck I.* Low-Temperature Electron Spin Resonance Theory for Half-Integer Spin Antiferromagnetic // Phys. Rev. Lett. 1999. V. 82. P. 5136–5139.
3. *Oshikawa M., Affleck I.* Electron spin resonance in S = 1/2 antiferromagnetic chains // Phys. Rev. B. 2002. V. 65. P. 134410 (1–28).
4. *Abrahams E., Wölfle P.* Electron spin resonance in Kondo systems // Phys. Rev. B. 2008. V. 78. P. 104423 (1–8).
5. *Wölfle P., Abrahams E.* Phenomenology of ESR in heavy-fermion systems: Fermi-liquid and non-Fermi-liquid regimes // Phys. Rev. B. 2009. V. 80. P. 235112 (1–8).
6. *Demishev S.V.* Electron Spin Resonance in Strongly Correlated Metals // Applied Magnetic Resonance. 2020. V. 53. P. 473–522.
7. *Елютин П.В., Кривченков В.Д.* Квантовая механика (с задачами). Учеб. пособие. М.: Наука, 1976. 336 с.
8. *Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М.* Теоретическая физика. В 10 т. Т. 3. Квантовая механика. Нерелятивистская теория. М.: Физматлит, 2016. 800 с.
9. *Мессиа А.* Квантовая механика. Т. 1. М.: Наука, 1978. 478 с.
10. *Гуревич А.Г., Мелков Г.А.* Магнитные колебания и волны. М.: Физматлит, 1994. 464 с.
11. *Semeno A.V., Gilmanov M.I., Bogach A.V., Krasnorussky V.N., Samarin A.N., Samarin N.A., Sluchanko N.E., Shitsevalova N.Yu., Filipov V.B., Glushkov V.V., Demishev S.V.* Magnetic resonance anisotropy in CeB_6: an entangled state of the art // Sci. Rep. 2016. V. 6. P. 39196 (1–8).
12. *Demishev S.V., Inagaki Y., Ohta H., Okubo S., Oshima Y., Pronin A.A., Samarin N.A., Semeno A.V., Sluchanko N.E.* Anomalous temperature dependence of the ESR Linewidth in $CuGeO_3$ doped with magnetic impuritiesand the universal relations in the Oshikawa-Affleck theory // Europhys. Lett. 2003. V. 63. P. 446–452.
13. *Семено А.В., Гильманов М.И., Случанко Н.Е., Шицевалова Н.Ю., Филиппов В.Б., Демишев С.В.* Антиферромагнитный резонанс в GdB_6 // Письма в ЖЭТФ. 2018. Т. 108. С. 243–258.

ELECTRON PARAMAGNETIC RESONANCE AND MODIFIED LANDAU–LIFSHITZ EQUATION IN STRONGLY CORRELATED ELECTRONIC SYSTEMS WITH QUANTUM FLUCTUATIONS OF THE MAGNETIC MOMENT

S. V. Demishev[a,b]

[a] *Prokhorov General Physics Institute of Russian Academy of Sciences, Moscow, Russian Federation*

[b] *National Research University Higher School of Economics, Moscow, Russian Federation*

Presented by Academician of the RAS I.A. Scherbakov

The Landau–Lifshitz equation modified by quantum fluctuations of the magnetic moment is proposed, on the basis of which a number of new effects in electron paramagnetic resonance in strongly correlated electronic systems are predicted, including: an increase in the integral intensity and the appearance of universal relations connecting the contribution to the linewidth, the shift of the resonance field, and integrated intensity. It is expected that the magnitude of the quantum corrections will depend on a single dimensionless parameter ~ $2\Delta M_z^2/\mu_B M_0$, where ΔM_z and M_0 are the amplitude of fluctuations and the average value of the magnetic moment per magnetic ion, respectively.

Keywords: electron paramagnetic resonance, strongly correlated electron systems, quantum fluctuations of the magnetic moment, Heisenberg uncertainty relations, Landau–Lifshitz equation, universal relations between the linewidth, *g*-factor and integrated intensity