Физика низких температур, 1995, т. 21, № 6, с. 621–627 УДК 537.6

Возникновение магнитного упорядочения в ядерных спиновых системах с диполь-дипольным взаимодействием при низкотемпературном насыщении ЯМР

Л. Л. Буишвили, Н. П. Гиоргадзе, Р. Р. Хомерики

Институт физики АН Грузии, Грузия, 380077, г. Тбилиси, ул. Тамарашвили, 2

Статья поступила в редакцию 3 января 1995 г.

Для исследования равновесного состояния, устанавливающегося по вращающейся системе координат в процессе насыщения ЯМР в ядерной спиновой системе с диполь-дипольным взаимодействием, использован закон сохранения энергии. Вычислены равновесные значения спиновой температуры и поляризации ядер. Показано, что при достаточно высокой начальной поляризации ядер насыщением ЯМР можно достичь реализации во вращающейся системе координат магнитоупорядоченного состояния ядерной спин-системы.

Для дослідження рівноважного стану, який виникає у системі координат, що обертається, у процесі насичення ЯМР в ядерній спіновій системі з диполь-дипольною взаємодією, використано закон збереження енергії. Обчислено рівноважні значення спінової температури і поляризації ядер. Показано, що при достатньо високій начальній поляризації ядер шляхом насичення ЯМР можливо досягти реалізації магнітоупорядкованого стану ядерної спін-системи в системі координат, що обертається.

В работе [1] было установлено, что при сверхнизких температурах ядерная спиновая система (ЯСС) с диполь-дипольным взаимодействием переходит во вращающейся системе координат (ВСК) в магнитоупорядоченное состояние. Впоследствии этому вопросу было посвящено большое количество работ, результаты которых суммированы в монографии [2]. Во всех случаях для получения в ВСК требуемых ($\sim 10^{-6}$–10^{-7} K) ядерных спиновых температур, при которых возникают магнитоупорядоченные состояния, использовался метод адиабатического размагничивания в ВСК (АРВСК). С другой стороны, хорошо известно, что эффективно воздействовать на ЯСС можно также быстрым включением переменного поля, как это происходит при ЯМР. Соответственно возникает вопрос: в какой мере насыщение ЯМР может быть использовано для получения в ВСК спиновых температур, необходимых для перехода ЯСС в магнитоупорядоченное состояние? Развитая в работе [3] квазитермодинамическая теория насыщения ЯМР при низких температурах не дает ответ на этот вопрос, поскольку уравнения теории, описывающие изменение во времени макроскопических параметров спин-системы (температуры и химического потенциала), не позволяют описать устанавливающееся в процессе насыщения стационарное состояние. Поэтому в настоящей работе для исследования стационарного состояния в ВСК будет использован закон сохранения энергии, ранее с успехом примененный с аналогичной целью в высокотемпературном приближении [4]. Будет показано, что при подходящих начальных условиях можно получить в ВСК температуру, необходимую для возникновении в ЯСС магнитоупорядоченного состояния.

1. Рассмотрим ЯСС с диполь-дипольным взаимодействием, помещенную в постоянное магнитное поле $\mathbf{H}_0$, параллельное оси z, и находящуюся в термодинамическом равновесии с решеткой при температуре T_L. Гамильтониан и равновесная матрица плотности спин-системы могут быть представлены соответственно в виде

$$H = H_z + H_d \,, \tag{1}$$

$$\rho_0 = \frac{\exp\left[-\beta_L(H_z + H_d)\right]}{\mathrm{Sp}\left\{\exp\left[-\beta_L(H_z + H_d)\right]\right\}} \,, \tag{2}$$

где

$$H_z = -\hbar\omega_I \sum_i I_i^z$$

— зеемановская энергия ядерных спинов I_i в поле $\mathbf{H}_0$;

$$H_d = \sum_{i \neq j} B_{ij}(3I_i^z I_j^z - I_i I_j)$$

— секулярная часть диполь-дипольного взаимодействия; $\beta_L = 1/kT_L$, k — постоянная Больцма-

© Л. Л. Буишвили, Н. П. Гиоргадзе, Р. Р. Хомерики, 1995

на; $\omega_I = \gamma H_0$ — зеемановская частота ядер, γ — гиромагнитное отношение;

$$B_{ij} = \frac{(\hbar\gamma)^2}{4r_{ij}^3}(1 - 3\cos^2\theta_{ij}) \ ,$$

$r_{ij} = |\mathbf{r}_{ij}|$, $\mathbf{r}_{ij} = \mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j$, $\mathbf{r}_i$ — радиус-вектор i-го узла решетки; θ_{ij} — угол между $\mathbf{r}_{ij}$ и осью z.

Пусть тепловая энергия kT_L много больше энергии ядерного спина в локальном поле, обусловленном диполь-дипольном взаимодействием, т.е. $\beta_L\hbar\omega_d \ll 1$, $\left(\omega_d = \frac{1}{\hbar}[\mathrm{Sp}\, H_d^2/\mathrm{Sp}\, I_z^2]^{1/2}\right.$ — локальная частота, $\left. I_z = \sum_i I_i^z\right)$. В этих условиях спин-система находится в парамагнитном состоянии, а ее средняя энергия в случае $I = 1/2$, рассмотрением которого ограничимся, дается известным выражением [2]

$$E_0 = \mathrm{Sp}\,\{\rho_0 H_0\} = -\frac{1}{2}N\hbar\omega_I \,\mathrm{th}\left[\frac{\beta_L\hbar\omega_I}{2}\right] -$$

$$-\frac{1}{4}N\beta_L(\hbar\omega_d)^2\left[1 - \frac{2}{3}\,\mathrm{th}^2\left(\frac{\beta_L\hbar\omega_I}{2}\right)\right]\mathrm{sech}^2\left(\frac{\beta_L\hbar\omega_I}{2}\right), \qquad (3)$$

где N — число ядерных спинов в образце. Для кубической решетки и при учете взаимодействия только с ближайшими (шестью) соседями $\omega_d = 6c/\hbar$, где $c = (\hbar\gamma)^2/(4a^3)$, a — параметр решетки. Мы, таким образом, используем приближение, принятое в работе [3]. Опираясь на исследование равновесных упорядоченных структур, возникающих в процессе АРВСК [2], можно утверждать, что более последовательный учет взаимодействий привел бы к некоторым количественным изменениям результатов.

2. Подвергнем ЯСС воздействию РЧ поля частотой $\omega \lesssim \omega_I$ и амплитудой h, циркулярно поляризованного в плоскости XY, компоненты которого могут быть представлены в виде

$$h_x(t) = h\cos\omega t \ , \ h_y(t) = h\sin\omega t \ , \ h_z(t) = 0 \ .$$

После включения этого поля гамильтониан спин-системы становится явно зависящим от времени. Поэтому целесообразно унитарным преобразованием $U = \exp(-i\omega t I_z)$ перейти в ВСК, в которой гамильтониан (1), дополненный энергией взаимодействия ЯСС с РЧ полем, преобразуется к не зависящему явно от времени виду:

$$\widetilde{H} = \widetilde{H}_z + H_d + \widetilde{H}' \ , \qquad (4)$$

где $\widetilde{H}_z = -\hbar\Delta\sum_i I_i^z$ представляет собой зеемановскую энергию в ВСК; $\widetilde{H}' = -\hbar\omega_1\sum_i I_i^x$ описывает взаимодействие ЯСС с РЧ полем, $\Delta = \omega_I - \omega$ и $\omega_1 = \gamma h$. Матрица плотности $\widetilde{\rho}_0 = U\rho_0 U^{-1}$ в момент (мгновенного) включения поля просто совпадает с ρ_0 и может быть записана в виде

$$\widetilde{\rho}_0 = \frac{\exp\left(-\frac{\omega_I}{\Delta}\beta_L\widetilde{H}_z - \beta_L H_d\right)}{\mathrm{Sp}\left\{\exp\left(-\frac{\omega_I}{\Delta}\beta_L\widetilde{H}_z - \beta_L H_d\right)\right\}} \ , \qquad (5)$$

тогда как средняя энергия дается выражением $\widetilde{E}_0 = \mathrm{Sp}\,\{\widetilde{\rho}_0\widetilde{H}\}$.

В дальнейшем ограничимся рассмотрением случая слабого РЧ поля ($\omega_1 \ll \omega_d$) и пренебрежем вкладом $\widetilde{H}'$ в среднюю энергию спин-системы. Тогда легко видеть, что $\widetilde{E}_0$ связана с E_0 соотношением $\widetilde{E}_0 = E_0 + \hbar\omega\mathrm{Sp}\,\{\rho_0 I^z\}$, откуда с учетом выражения (3) имеем*

$$\widetilde{E}_0 = -\frac{1}{2}N\hbar\Delta \,\mathrm{th}\left(\frac{\beta_L\hbar\omega_I}{2}\right) -$$

$$-\frac{1}{4}N\beta_L(\hbar\omega_d)^2\left[1 - \frac{2}{3}\,\mathrm{th}^2\left(\frac{\beta_L\hbar\omega_I}{2}\right)\right]\mathrm{sech}^2\left(\frac{\beta_L\hbar\omega_I}{2}\right). \qquad (6)$$

Нетрудно видеть, что $\widetilde{E}_0 < 0$.

Второе слагаемое в выражении (6) играет роль лишь при достаточно малых значениях Δ. Исключая эту область из рассмотрения, для начального значения средней энергии ЯСС в ВСК получаем

$$E_0 \simeq -\frac{1}{2}N\hbar\Delta p_0 \ , \qquad (7)$$

где $p_0 = \mathrm{th}\left(\beta_L\hbar\omega_I/2\right)$ — начальная ядерная поляризация в лабораторной системе координат.

Из выражения (5) следует, что в момент включения РЧ поля ЯСС находится в термодинамически неравновесном состоянии. К установлению равновесного состояния приводит взаимодействие, описываемое оператором H', играющим роль некоммутирующего с $\widetilde{H}_z$ и H_d взаимодействия. Матрица плотности примет стандартный вид:

* К этому же результату приходим при прямом вычислении $\widetilde{E} \simeq \mathrm{Sp}\,[\widetilde{\rho}_0(\widetilde{H}_z + H_d)]$.

$$\tilde{\rho}_s = \frac{\exp\left[-\beta_s(\tilde{H}_z + H_d)\right]}{\mathrm{Sp}\left\{\exp\left[-\beta_s(\tilde{H}_z + H_d)\right]\right\}}\,, \qquad (8)$$

где $\beta_s = 1/kT_s$, T_s — подлежащая определению температура равновесного состояния, ее можно получить из закона сохранения энергии

$$\tilde{E}_0(\Delta, p_0) = \tilde{E}_s(\Delta, \beta_s)\,, \qquad (9)$$

где $\tilde{E}_s = \mathrm{Sp}\{\tilde{\rho}_s(\tilde{H}_z + H_d)\}$ — средняя энергия установившегося равновесного состояния. При адиабатическом размагничивании включение РЧ поля осуществляется достаточно медленно, вследствие чего в течение всего процесса размагничивания сохраняется энтропия спин-системы. Поэтому связь между начальными и конечными значениями параметров спин-системы определяется из условия сохранения энтропии. Задача, следовательно, заключается в вычислении $\tilde{E}_s$.

3. Равновесные состояния, реализующиеся в ЯСС с диполь-дипольным взаимодействием в ВСК, детально исследованы в монографии [2], и мы можем использовать полученные в [2] результаты, предварительно упростив их на случай взаимодействия с ближайшими соседями, рассматриваемый в настоящей работе. Согласно этим результатам, ЯСС, помещенная в магнитное поле Δ/γ, ориентированное вдоль оси [001] простой кубической решетки (ось z), при положительной температуре* образует двухподрешеточную структуру (так называемая продольная антиферромагнитная структура), в которой спины каждой из подрешеток расположены в плоскостях, ортогональных направлению [110], коллинеарно направлению [001], причем плоскости различных подрешеток чередуются. Энергия ЯСС в этом состоянии (при не слишком низких T_s может быть вычислена в первом приближении укороченного следа [5] и имеет вид

$$\tilde{E}_s = -\frac{1}{4}N\hbar\Delta(p_1 + p_2) - \\ - Nc(p_1 - p_2)^2 - N\beta_s K(p_1, p_2)\,, \qquad (10)$$

$$K(p_1, p_2) = \frac{1}{2}c^2\left[18 - 12(p_1^2 + p_2^2) + 3(p_1^2 + p_2^2)^2 - \right. \\ \left. - \frac{3}{2}(p_1 + p_2)^2 + (p_1^2 - p_2^2)^2 - \frac{1}{2}(p_1 - p_2)^2\right]\,, \qquad (11)$$

поляризации подрешеток $p_{1,2} = 2\langle I^z_{1,2}\rangle = 2\,\mathrm{Sp}\{\rho_s I^z_{1,2}\}$ определяются системой уравнений

$$p_1 = \mathrm{th}\left[\frac{\hbar\Delta\beta_s}{2} + 4c\beta_s(p_1 - p_2) + \beta_s^2(\partial K/\partial p_1)\right]\,, \qquad (12)$$

$$p_2 = \mathrm{th}\left[\frac{\hbar\Delta\beta_s}{2} - 4c\beta_s(p_1 - p_2) + \beta_s^2(\partial K/\partial p_2)\right]\,,$$

полученной на основе критерия термодинамической стабильности, согласно которому при заданном значении энергии (10) энтропия спин-системы, равная

$$S = \frac{1}{2}N\ln\left[4\frac{(1-p_1)^{(1-p_1)/2}(1-p_2)^{(1-p_2)/2}}{(1+p_1)^{(1+p_1)/2}(1+p_2)^{(1+p_2)/2}}\right] + \\ + \frac{1}{2}N\beta_s^2 K\,, \qquad (13)$$

должна быть максимальной (см. монографию [2, стр. 222]).

Заметим, что система уравнений (12) имеет тривиальное решение [6]:

$$p_1 = p_2 = p = \mathrm{th}\left(\frac{\beta_s\hbar\Delta}{2}\right)\,, \qquad (14)$$

которому соответствует средняя энергия

$$\tilde{E}_s(\Delta, p) = -\frac{1}{2}N\hbar\Delta p - \\ - \frac{1}{4}N\beta_s(\hbar\omega_d)^2(1 - \frac{2}{3}p^2)(1 - p^2)\,. \qquad (15)$$

Ниже увидим, что это выражение может быть использовано для существенного упрощения процедуры вычисления параметров спин-системы в состоянии равновесия.

Выражения (10) и (12) перестают быть справедливыми при равновесных температурах, гораздо меньших температуры фазового перехода из парамагнитного в магнитоупорядоченное состояние. Для описания ЯСС в этой области температур используем спин-волновое приближение. В рамках этого приближения в слабых магнитных полях ($\hbar\Delta/8c < 1$) основное состояние ЯСС представляет собой вышеупомянутую продольную антиферромагнитную структуру. Гамильтониан системы записывается в виде [2]

$$\tilde{H}'_s = -\frac{1}{2}N(8c + \delta\varepsilon) + \sum_{\sigma=1,2}\sum_k \varepsilon_k^{(\sigma)} a_{\sigma k}^+ a_{\sigma k}\,, \qquad (16)$$

* Поскольку $\tilde{E}_0$, а следовательно и $\tilde{E}_s$, отрицательны, спиновая температура равновесного состояния должна быть положительна (см. монографию [2, стр. 221]). Этим и определяется рассмотрение стабильной структуры, устанавливающейся при положительной температуре.

где $a^+_{\sigma k}$ и $a_{\sigma k}$ — соответственно операторы рождения и уничтожения магнонов σ-ветви спиновых волн;

$$\varepsilon_k^{(\sigma)} = (-1)^\sigma \hbar\Delta + 2c\left[4(4+\cos k_z a)^2 - (\cos k_x a + \cos k_y a)^2\right]^{1/2}$$

— энергия σ-ветви спиновых волн;

$$\delta\varepsilon \simeq \frac{c}{N}\sum_k (\cos k_x a + \cos k_y a)^2/(4+\cos k_z a) \approx \approx c/4 \ll 8c$$

— «неоператорная» поправка к гамильтониану, возникающая при диагонализации исходного гамильтониана спин-системы [6], σ принимает значения 1, 2 в соответствии с наличием двух ветвей спиновых волн. Здесь не учтены члены, соответствующие четырехмагнонным процессам и взаимодействию с внешним РЧ полем, так как эти слагаемые не вносят существенный вклад в энергию газа магнонов. Однако эти члены ответственны за быстрое установление термодинамического равновесия в ядерной спин-системе.

Среднее значение энергии, отвечающее термодинамически равновесному состоянию при температуре T_s, легко может быть вычислено с использованием выражения (16) и имеет вид

$$\tilde{E}'_s = -\frac{1}{2}N(8c+\delta\varepsilon) + \frac{8N}{\sqrt{6}(8\pi c\beta_s)^{3/2}} \times \left[\frac{3}{2\beta} + 8\sqrt{2}c - \hbar\Delta\right]\exp\left[-\beta_s(8\sqrt{2}c - \hbar\Delta)\right], \quad (17)$$

в то время как поляризации подрешеток даются выражениями

$$p'_1 \simeq (1-\delta p) - \frac{4}{N}\sum_k \langle a^+_{1k}a_{1k}\rangle \approx (1-\delta p) - \frac{32N}{\sqrt{6}(8\pi c\beta_s)^{3/2}}\exp\left[-\beta_s(8\sqrt{2}c + \hbar\Delta)\right], \quad (18)$$

$$p'_2 \simeq (-1+\delta p) + \frac{4}{N}\sum_k \langle a^+_{2k}a_{2k}\rangle \approx (-1+\delta p) + \frac{32N}{\sqrt{6}(8\pi c\beta_s)^{3/2}}\exp\left[-\beta_s(8\sqrt{2}c - \hbar\Delta)\right],$$

где

$$\delta p \simeq \frac{1}{N}\sum_k \frac{(\cos k_x a + \cos k_y a)^2}{4(4+\cos k_z a)^2} \approx 0{,}02 .$$

В сильных магнитных полях ($\hbar\Delta/8c > 1$) ЯСС переходит в ферромагнитно упорядоченное состояние* с гамильтонианом [3]

$$\tilde{H}'_s = -\frac{1}{2}N\hbar\Delta + \sum_k \varepsilon_k a^+_k a_k , \quad (19)$$

где

$$\varepsilon_k = \hbar\Delta + 2c(2\cos k_z a - \cos k_x a - \cos k_y a) .$$

Отсюда для средней энергии спин-системы в состоянии термодинамического равновесия, а также для ядерной поляризации в соответствии с результатами работы [3] будем иметь

$$\tilde{E}''_s = -\frac{1}{2}N\hbar\Delta + \frac{2N}{(8\pi c\beta_s)^{3/2}}\left[\frac{3}{2\beta} + \hbar\Delta - 8c\right] \times \exp\left[-\beta_s(\hbar\Delta - 8c)\right], \quad (20)$$

$$p''_1 = p''_2 = p \simeq 1 - \frac{2}{N}\sum_k \langle a^+_k a_k\rangle \approx \approx 1 - \frac{4N}{(8\pi c\beta_s)^{3/2}}\exp\left[-\beta_s(\hbar\Delta - 8c)\right] . \quad (21)$$

Выражения (17), (18) либо (20), (21) будут (в зависимости от значения Δ) использоваться для установления равновесных значений параметров спин-системы в тех случаях, когда вычисленная с привлечением выражения (15) равновесная спиновая температура выходит из области применимости приближения укороченного следа.

4. Хорошо известно, что, если в начальном состоянии тепловая энергия ядерного спина намного превышает его зеемановскую энергию во внешнем поле, т.е. если имеет место условие $\beta_L\hbar\omega_I \ll 1$, равновесное значение обратной температуры, устанавливающейся в ВСК в процессе насыщения ЯМР (при $\Delta \gg \omega_d^2/\omega_I$), равно

$$\beta_s \simeq \frac{\Delta\omega_I}{\Delta^2 + \omega_d^2}\beta_L . \quad (22)$$

Отсюда следует, что $\beta_s/\beta_{kp} \ll 1$, где β_{kp} — обратная температура фазового перехода из парамаг-

* Рассматривая эту область Δ, подразумеваем, что РЧ поле, малое по сравнению с локальным, тем не менее способно обеспечить нерезонансное насыщение ЯМР.

нитного в ферромагнитное состояние, по порядку величины совпадающая с $(\hbar\omega_d)^{-1}$. Это означает, что равновесное состояние, устанавливающееся в ВСК при насыщении ЯМР в упомянутых выше условиях, является парамагнитным, далеким от точки фазового перехода.

Структура уравнения (22) дает основание полагать, что равновесная температура может значительно превосходить критическую и при сравнимых с единицей начальных поляризациях, во всяком случае при малых расстройках резонанса. Действительно, подставляя в условие сохранения энергии (9) выражения (7) и (15), учитывая (14) и полагая $\beta_s\hbar\Delta < \beta_s\hbar\omega_d << 1$, для стационарной обратной температуры получаем

$$\beta_s = \frac{2\Delta p_0}{\hbar(\Delta^2+\omega_d^2)} = \frac{\Delta\omega_I}{\Delta^2+\omega_d^2}\left[\frac{2p_0}{\beta_L\hbar\omega_I}\right]\beta_L \quad , \qquad (23)$$

самосогласованное в интервале расстроек

$$\frac{\omega_d^2}{\omega_I}(1-\frac{2}{3}p_0^2)(1-p_0^2)\frac{\beta_L\hbar\omega_I}{2p_0} << \Delta << \frac{\omega_d}{p_0} \quad . \qquad (24)$$

В пределе $\beta_L\hbar\omega_I << 1$ оно переходит в (22).

Подставляя полученный результат в выражение (14), для отношения конечной поляризации ядер к начальной находим $p/p_0 \simeq (\Delta/\omega_d)^2$, т.е. степень деполяризации ядер в процессе насыщения ЯМР (для расстроек резонанса, ограниченных неравенством (24)) не зависит от β_L.

Теперь определим равновесные параметры ЯСС во всем рассматриваемом диапазоне расстроек $(\omega_d^2/\omega_I << \Delta << 1{,}7\omega_d)$ при произвольных значениях начальной поляризации ядер. Из приведенного выше аналитического выражения следует, что эту процедуру целесообразно начинать с малых Δ, привлекая для описания спин-системы первое приближение укороченного следа. При этом могут быть использованы следующие упрощающие соображения: поскольку при любых заданных значениях β_s система уравнений (12) имеет по крайней мере парамагнитное решение (14) и поскольку все решения системы уравнений (12), отвечающие заданному значению β_s, дают одно и то же решение для энергии (10), для вычисления β_s достаточно считать, что равновесное состояние спин-системы является парамагнитным. Подстановка в условие сохранения энергии (9) выражений (7) и (15) с учетом (14) приводит к трансцендентному уравнению для β_s. Если найденное из него значение $\beta_s < \beta_{cr}$ (критическая обратная температура β_{cr} в приближении молекулярного поля определяется уравнением $8c\beta_{cr} = \mathrm{ch}^2(\beta_{cr}\hbar\Delta/2)$), то парамагнитное состояние является термодинамически выгодным, и спиновая поляризация вычисляется по формуле (14). Если же $\beta_s > \beta_{cr}$, термодинамически выгодным является магнитоупорядоченное состояние, и для вычисления поляризации должны быть привлечены уравнения (12).

Численные результаты приведены на рис. 1 и 2. На рис. 1,*а* изображены зависимости β_s, p_1, p_2 от Δ при заданных значениях начальной поляризации p_0, а также приведена зависимость β_{cr} от Δ (пунктирная кривая). Как было отмечено выше, при $\beta_L\hbar\omega_I << 1$ ЯСС в процессе насыщения ЯМР (при любых рассматриваемых Δ) остается в парамагнитной фазе вдали от точки фазового перехода. При этом, как известно [4], $\beta_s(\Delta)$ имеет максимум в точке $\Delta \simeq \omega_d$, соответствующий наибольшему

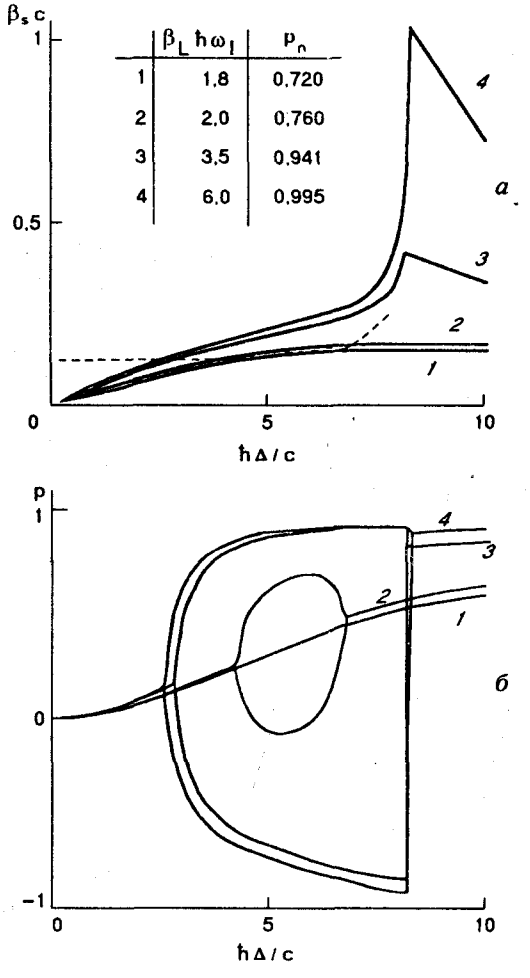

Рис. 1. Зависимость конечной обратной температуры β_s и поляризации подрешеток ЯСС-ВСК относительно расстройки резонанса $\hbar\Delta/c$ при различных значениях начальной поляризации p_0 в лабораторной системе отчета. Пунктирная кривая на верхнем графике — зависимость критической обратной температуры β_{cr}, при которой происходит фазовый переход из парамагнитного в антиферромагнитное упорядоченное состояние, от $\hbar\Delta/c$.

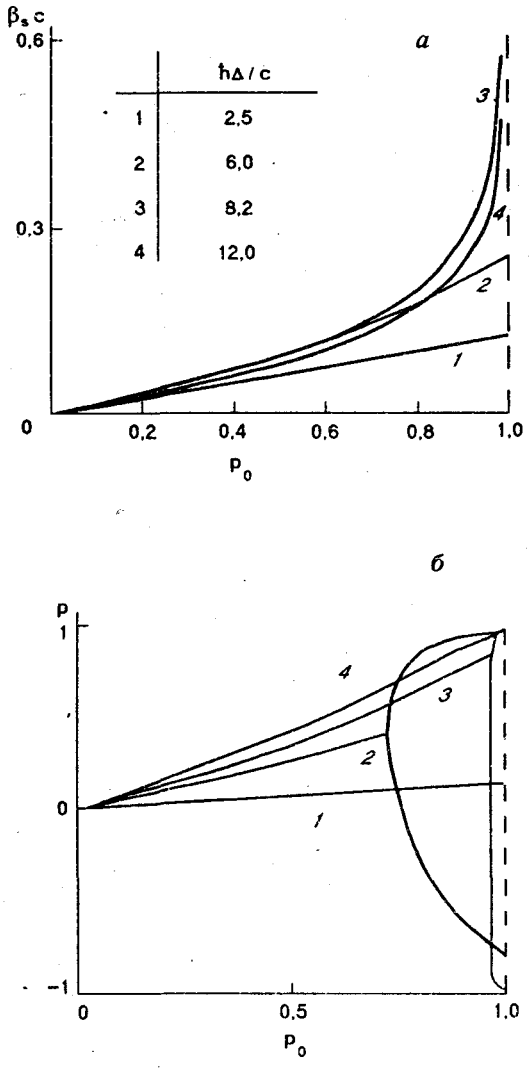

Рис. 2. Зависимость конечной обратной температуры β_s и поляризации подрешеток ЯСС от начальной поляризации p_0 в лабораторной системе координат при различных значениях относительной расстройки резонанса $\hbar\Delta/c$

(при данных условиях) охлаждению спин-системы. Характер зависимости β_s от Δ предопределяется условием сохранения энергии: при $\Delta < \omega_d$ баланс энергии обеспечивается главным образом энергией диполь-дипольного взаимодействия в конечном состоянии $(-N(\hbar\omega_d)^2\beta_s/4)$. Поскольку абсолютная величина энергии начального состояния возрастает пропорционально Δ, должна увеличиваться и абсолютная величина энергии диполь-дипольного взаимодействия в конечном состоянии. Это, очевидно, возможно лишь за счет роста β_s. При $\Delta > 8c$ баланс энергии обеспечивается уже зеемановской энергией конечного состояния $-N(\hbar\Delta)^2\beta_s/4$. Отсюда следует, что с ростом Δ произведение $\beta_s\Delta$ должно оставаться постоянным.

С ростом β_L характер зависимости β_s от Δ сохраняется, а степень охлаждения растет, в результате чего при $p_0 = 0{,}72$ минимальная температура спин-системы (по-прежнему достигаемая при $\Delta \simeq \omega_d$) становится равной критической (кривая *1*). Данная поляризация ($p_0 = 0{,}72$) для внешнего поля порядка 25 кЭ соответствует начальной температуре в лабораторной системе координат ($T_L = 2{,}8\cdot10^{-3}$ К). С дальнейшим (не слишком сильным) ростом параметра $\beta_L\hbar\omega_1$ при некотором Δ_1 расстройки ЯМР β_s достигает критического значения.

Это означает, что в точке Δ_1 происходит фазовый переход из парамагнитного в магнитоупорядоченное состояние, которое, как это хорошо видно на рис. 1,*б*, является антиферромагнитным. Антиферромагнитное состояние остается термодинамически выгодным для некоторого значения Δ_2 расстройки резонанса, при котором $\beta_s(\Delta)$, убывая, вновь достигает критического значения и спин-система совершает обратный переход в парамагнитное состояние. Описанная картина иллюстрируется кривой *2* ($p_0 = 0{,}76$).

Антиферромагнитному состоянию соответствует интервал расстроек $0{,}72 \le \Delta/\omega_d \le 1{,}1$.

Заметим, что все изложенные выше результаты получены в рамках приближения укороченного следа, удовлетворительно описывающего ЯСС при рассмотренных начальных условиях и расстройках ЯМР.

Качественное изменение поведения $\beta_s(\Delta)$ наступает при начальных ядерных поляризациях, порядка 0,85 и более. После того как при некоторой расстройке резонанса Δ_1 происходит фазовый переход в антиферромагнитное состояние, β_s монотонно возрастает с ростом Δ, оставаясь больше β_{cr}. В результате ЯСС остается в антиферромагнитной фазе вплоть до расстройки резонанса $\Delta_3 \simeq 8c = 1{,}3\,\omega_d$, на которой происходит фазовый переход из антиферромагнитного в ферромагнитно упорядоченное (схлопнутое) состояние. При этом с приближением к точке перехода рост β_s резко усиливается, и фазовый переход совершается в условиях сильного охлаждения ЯСС, степень которого наглядно иллюстрируется кривыми *3* и *4* (рис. 1,*а*). Так, в случае $p_0 = 0{,}941$ критическая обратная температура фазового перехода из парамагнитного в антиферромагнитное состояние при $\Delta_1 \simeq 0{,}46\,\omega_d$ порядка 0,15/с, тогда как обратная тем-

пература в точке перехода из антиферромагнитного в ферромагнитно упорядоченное состояние составляет 0,41/с. Дальнейшее увеличение Δ сопровождается уменьшением β_s, т.е. разогревом ЯСС. Следует заметить, что при начальных поляризациях, превышающих 0,85, и расстройках резонанса, близких к $1{,}3\,\omega_d$, охлаждение спин-системы оказывается столь существенным, что первое приближение укороченного следа становится неудовлетворительным и приходится переходить к спин-волновому описанию ЯСС.

Качественные особенности поведения $\beta_s(\Delta)$ при больших начальных поляризациях также могут быть выявлены из анализа условия сохранения энергии. Ограничимся рассмотрением диапазона расстроек, в котором ЯСС находится в магнитоупорядоченном состоянии. В значительной части этого диапазона степень охлаждения спин-системы столь высока, что для ее описания может быть использовано спин-волновое приближение*. Поэтому в качестве энергии конечного состояния ЯСС в антиферромагнитной фазе может быть использовано выражение (17). Приравнивая изменения энергии начального и конечного состояний, обусловленные малым изменением Δ, и проводя элементарные вычисления, находим, что $\partial\beta_s/\partial\Delta > 0$. Отсюда следует, что при достаточно больших p_0 в антиферромагнитной фазе $\beta_s(\Delta)$ является монотонно возрастающей функцией Δ.

В ферромагнитной фазе доминирующий вклад в энергию конечного состояния вносит зеемановская часть

$$-\frac{1}{2}N\hbar\Delta + \frac{2N}{(8\pi c\beta_s)^{3/2}}\hbar\Delta\exp\left[-\beta_s(\hbar\Delta - 8c)\right] \quad .$$

Сравнивая ее с энергией начального состояния, убеждаемся, что для обеспечения баланса энергии в области $\hbar\Delta/8c > 1$ обратная температура β_s должна монотонно убывать с ростом Δ, т.е. спин-система должна разогреваться.

На рис. 2 равновесные параметры ЯСС представлены как функции p_0 при заданном значении Δ. Видно, что при малых расстройках резонанса насыщение ЯМР не приводит к возникновению упорядоченных спиновых структур. Однако с ростом Δ переход в упорядоченное состояние становится возможным. Например, в случае $\Delta \simeq \omega_d$ он происходит при начальной поляризации $p_0 = 0{,}72$.

На основании полученных результатов можно сделать следующее заключение: использование закона сохранения энергии позволяет определить спиновую температуру ЯСС, устанавливающуюся в процессе насыщения ЯМР как при высоких, так и при низких начальных температурах спин-системы.

При надлежащем (реализуемом) подборе начальных условий насыщением ЯМР может быть достигнуто возникновение в ВСК магнитоупорядоченного состояния.

Проведение исследований, описанных в настоящей публикации, оказалось возможным во многом благодаря гранту № MXK000, полученному от Международного научного фонда.

1. M. Chapelier, M. Goldman, Vu Hoang Chau, and A. Abragam, *J. Appl. Phys.* **41**, 849 (1970).
2. А. Абрагам, М. Гольдман, *Ядерный магнетизм: порядок и беспорядок*, Москва, Мир (1984), т. 2.
3. Э. Б. Фельдман, А. К. Хитрин, *ЖЭТФ* **98**, 967 (1990).
4. М. Гольдман, *Спиновая температура и ЯМР в твердых телах*, Москва, Мир (1972), с. 52.
5. Р. Браут, *Фазовые переходы*, Москва, Мир (1967).
6. С. В. Тябликов, *Методы квантовой теории магнетизма*, Москва, Наука (1975).

Magnetic order development in nuclear spin systems with dipole–dipole interaction at low temperature saturation by the NMR

L. L. Buishvili, N. P. Giorgadze, and R. R. Khomeriki

The energy conservation law has been used to investigate the equilibrium state in a rotating coordinate system, during saturation of the nuclear spin-system with dipole-dipole interaction by the NMR.We have calculated the equilibrium values of nuclear spin temperature and polarization. It is shown, that for large enough initial nuclear polarization, after saturation by the NMR, it is possible to realize nuclear spin-system magnetic order in a rotating coordinate system.

* Например, при $p_0 = 0{,}941$ переход в антиферромагнитное состояние имеет место при $\Delta \simeq 0{,}45\omega_d$, а спин-волновое приближение становится применимым для $\Delta \geq 0{,}97\omega_d$.