ЖЭТФ, 1997, том 111, вып. 2, стр. 730–736 ©1997

СПИНОВАЯ ДИНАМИКА МЮОНА В МЮОНИИ В НОРМАЛЬНЫХ МЕТАЛЛАХ

А. Н. Белемук, Ю. М. Белоусов, В. П. Смилга

Московский физико-технический институт
141700, г. Долгопрудный, Московская обл., Россия

Поступила в редакцию 25 июля 1996 г.

Вопрос о зарядовом состоянии протона (положительного мюона) в металлах имеет принципиальное значение для теории гидридов металлов. Развитая теория позволяет определить зарядовое состояние μ^+ в нормальных металлах. Проанализированы экспериментальные возможности наблюдения атома Mu в металлах при различных значениях внешнего магнитного поля и температуры.

1. Вопрос о зарядовом состоянии положительного мюона в металлах, или, что то же, вопрос о состоянии протона, весьма актуален в первую очередь в связи с тем вниманием, которое привлекают гидриды металлов. Однако до сих пор этот вопрос не решен ни теоретически, ни экспериментально. Более того, даже если считать, что протон не вступает в химическое соединение с атомами решетки и локализован в том или ином междоузлии решетки, не ясно, образует ли он связанное состояние с электроном проводимости металла, т. е. есть ли «локальный уровень» для электрона. Было бы странно, если бы такое связанное состояние отсутствовало во всех металлах и особенно в полуметаллах.

Итак, вся проблема имеет общее значение для физики твердого тела.

В настоящее время при анализе результатов μSR-экспериментов в металлах молчаливо предполагается, что атом мюония Mu (связанное зарядовое состояние μ^+e^-) отсутствует. Действительно, до сих пор, как правило, наблюдалась прецессия поляризации спина мюона с частотой близкой к частоте прецессии поляризации спина мюона в вакууме (см., например, [1, 2]). Единственное исключение составляют эксперименты в Sb, где в интервале температуры $2 < T < 300$ K обнаружен аномально большой сдвиг частоты [3]. Однако, так как вплоть до полей $B = 9$ кГс этот сдвиг пропорционален полю, его естественно отождествить со сдвигом Найта[1)].

2. Как хорошо известно [1, 2], прецессия поляризации спина мюона с мюониевыми частотами может не наблюдаться, даже если атом Mu и существует.

Действительно, ввиду больших частот обменов с электронами проводимости при $T > 1$–5 K сверхтонкое взаимодействие в атоме Mu «разорвано» и эффективно наблюдается «голый» мюон μ^+, т. е. можно сказать, что «спиновый мюоний» отсутствует, даже если имеется «кулоновский мюоний».

В работе [5] были получены уравнения, описывающие поведение поляризации спина мюона при образовании атома мюония в металле. Там же даны и рекомендации для экспериментальной идентификации атома Mu. Однако в работе [5] не был приведен

[1)] Совсем недавно проведенные эксперименты по изучению температурной зависимости скорости деполяризации спина мюона в монокристаллах Sb показывают, что атом Mu все-таки образуется [4].

ряд важных для эксперимента следствий, отчасти потому, что авторы ограничились анализом только возможностей эксперимента для аппаратуры, имевшейся в то время. За последние 20 лет возможности μSR-эксперимента существенно расширились, в первую очередь для временного разрешения прецессии поляризации. Обычными стали и исследования при очень низких температурах ($T < 0.1$ К).

Даже если в металле образовался атом Mu, частота сверхтонкого расщепления атома Mu в металле ω_0 ввиду экранировки электронами проводимости должна существенно отличаться от вакуумного значения $\omega_0^{vac} = 2.8 \cdot 10^{10}$ с$^{-1}$. Введем безразмерный параметр $\alpha = \omega_0/\omega_0^{vac}$. При $\alpha \sim 10^{-3}$ «размер» атома Mu в металле порядка 5 Å, что существенно превышает постоянную решетки для всех металлов. Оценки дают типичное значение $\alpha \le 10^{-2}$–10^{-1}($\omega \le 3 \cdot 10^8$–$3 \cdot 10^9$ с$^{-1}$, $\hbar\omega_0 \le 0.2 \cdot 10^{-2}$–0.02 К).

Так как в начальный момент времени ансамбль атомов мюония есть некогерентная смесь состояний $|+\rangle|+\rangle$ и $|-\rangle|+\rangle$, то в нулевом внешнем поле без учета взаимодействия со средой поляризация спина мюона, очевидно, есть

$$P(t) = [1 + \cos(\omega_0 t)]\, P(0)/2. \tag{1}$$

Осцилляции обусловлены тем, что начальное состояние $|-\rangle|+\rangle$ не является собственным состоянием спинового гамильтониана.

3. При взаимодействии со средой поведение $P(t)$ может резко измениться. Определим реальные условия, при которых возможно наблюдение «спинового мюония». Прежде чем перейти к анализу возможностей экспериментального обнаружения атома Mu в металле, запишем релаксационное уравнение для спиновой матрицы плотности мюония. В металле релаксация спина электрона мюония в основном обусловлена обменным рассеянием на электронах среды, поэтому для релаксационных уравнений хорошо применимо приближение коротких времен корреляции. В этом случае исходные релаксационные уравнения имеют вид [2, 6]

$$\frac{\partial \rho_{mn}}{\partial t} + \frac{i}{\hbar}[H_0 + \Gamma, \rho]_{mn} = \sum_{k,l} \left\{ \left[\Gamma_{mkln}(\omega_{ln}) + \Gamma_{lnmk}(\omega_{mk}) \exp\left(-\frac{\hbar\omega_{mk}}{T}\right) \right] \rho_{kl} - \right.$$
$$\left. - \Gamma_{mkkl}(\omega_{kl}) \exp\left(-\frac{\hbar\omega_{kl}}{T}\right) \rho_{ln} - \Gamma_{knlk}(\omega_{lk})\rho_{ml} \right\}, \tag{2}$$

где $\widehat{H}_0$ — гамильтониан мюония, $\omega_{kl} = (E_k - E_l)/\hbar$, E_k — спектр $\widehat{H}_0$, а коэффициенты определяются оператором взаимодействия мюония с термостатом $\widehat{V}$:

$$\Gamma_{mkln}(\omega_{ln}) = \frac{\pi}{\hbar} \sum_{\alpha,\alpha'} V_{m\alpha k\alpha'} V_{l\alpha' n\alpha} \rho_{\alpha'\alpha} \delta(\omega_{ln} + \omega_{\alpha'\alpha}), \tag{3}$$

$$\Gamma_{mk} = \wp \sum_{\alpha,\alpha',l} V_{m\alpha l\alpha'} V_{l\alpha' k\alpha} \rho_{\alpha\alpha} (\omega_{ln} + \omega_{\alpha'\alpha})^{-1}. \tag{4}$$

Здесь $\omega_{\alpha\alpha'} = (\varepsilon_\alpha - \varepsilon_{\alpha'})/\hbar$ (ε_α — спектр термостата (электронов проводимости металла), символ $\wp$ означает, что сумму (4) следует понимать в смысле главного значения, $\rho_{\alpha'\alpha} = \delta_{\alpha'\alpha} \exp[(F - \varepsilon_\alpha)/T]$ — матрица плотности термостата.

Оператор спин-обменного взаимодействия мюония (парамагнитной примеси) с электронами проводимости металла запишем, как обычно, в виде [7, 8]

$$\widehat{V} = \frac{J}{n} \sum_{\mathbf{k}\sigma\mathbf{k}'\sigma'} \mathbf{s}_e \mathbf{s}_{\mathbf{k}\sigma,\mathbf{k}'\sigma'} a^{+}_{\mathbf{k}\sigma} a_{\mathbf{k}'\sigma'}, \tag{5}$$

где J — константа обменного взаимодействия, n_0 — плотность электронов проводимости, $\mathbf{s}_e$ и $\mathbf{s}_{\mathbf{k}\sigma,\mathbf{k}'\sigma'}$ — соответственно спиновые операторы электронов мюония и среды. Очевидно, что $V_{ma n\alpha} \neq 0$, поэтому диагональную по термостату часть взаимодействия относим к гамильтониану $\widehat{H}_0$, а в формулы (3) и (4) следует подставлять $\widehat{V} = \widehat{V} - \widehat{V}_d$, где $(\widehat{V}_d)_{mn} = \sum_\alpha V_{m\alpha n\alpha}\rho_{\alpha\alpha}$.

После довольно громоздких выкладок получаем выражения для релаксационных коэффициентов (3)

$$\Gamma_{mkln}(\omega_{ln}) = \frac{\pi}{2}\left(\frac{3J}{\varepsilon_F}\right)^2 \omega_{ln} \operatorname{cth}\frac{\hbar\omega_{ln}}{2T} \mathbf{s}_{mk}\mathbf{s}_{ln}, \tag{6}$$

и для матрицы, определяющей сдвиг энергии, оставляя только основные члены:

$$\Gamma_{mn} \approx \frac{3}{4}\left(\frac{3J}{4\varepsilon_F}\right)^2 \varepsilon_F \delta_{mn}. \tag{7}$$

Диагональная по термостату часть взаимодействия определяется поляризацией электронов металла. В не очень сильных полях имеем

$$V_d = -2\mu_0\left(\frac{J}{\varepsilon_F}\right)\mathbf{sB}, \tag{8}$$

где μ_0 — магнетон Бора. Как видим, сдвиг энергии (7) несуществен для нас, поскольку не влияет на сверхтонкую структуру мюония, тогда как поправка (8) эффективно сводится к перенормировке магнитного момента электрона мюония. Знак поправки противоположен знаку обменного интеграла.

Когда $T \gg |\hbar\omega_{ln}|$, что выполняется даже для вакуумного мюония при $T > 1$ K в полях $B < 10^4$ Гс, релаксационные коэффициенты имеют очень простой вид:

$$\Gamma_{mkln} \approx \nu \mathbf{s}_{mk}\mathbf{s}_{ln}, \tag{9}$$

где

$$\nu = \frac{\pi}{\hbar}\left(\frac{3J}{\varepsilon_F}\right)^2 T.$$

В этом случае релаксационное уравнение сводится к простому уравнению Вангснесса–Блоха, в гамильтониане которого следует учесть эффективную перенормировку магнитного момента электрона мюония:

$$\dot{\rho} + \frac{i}{\hbar}\left[\widehat{H}_{eff}, \hat{\rho}\right] = \frac{\nu}{2}\left(\hat{\boldsymbol{\sigma}}_e \hat{\rho} \hat{\boldsymbol{\sigma}}_e - 3\hat{\rho}\right). \tag{10}$$

В области низких температур $T \leq 0.1$ K релаксационное уравнение оказывается весьма сложным [5], однако может быть решено во всем диапазоне температуры в нулевом внешнем магнитном поле. Рассмотрим сперва случай малых эффективных частот обмена ($|\Gamma_{mkln}| \ll \omega_0$), тогда должны наблюдаться осцилляции поляризации с частотой сверхтонкого расщепления. В пренебрежении членами порядка ν/ω_0 поляризация имеет вид

$$P(t) \approx \frac{1}{2}\left[\exp\left(-\frac{t}{\tau_1}\right) + \exp\left(-\frac{t}{\tau_2}\right)\cos(\omega_0 t)\right] P(0), \tag{11}$$

где

$$\tau_1^{-1} = \frac{\nu}{2}\left(1 + \frac{\hbar\omega_0}{2T}\operatorname{cth}\frac{\hbar\omega_0}{2T}\right), \tag{12}$$

$$\tau_2^{-1} = \tau_1^{-1} + \nu\frac{\hbar\omega_0}{4T}\operatorname{cth}\frac{\hbar\omega_0}{2T}. \tag{13}$$

Как видно, при $T \to 0$ $(T < \hbar\omega_0)$ скорости деполяризации неосциллирующей и осциллирующей компонент стремятся к постоянной величине:

$$\tau_1^{-1} = \frac{\pi\omega_0}{2}\left(\frac{3J}{\varepsilon_F}\right)^2, \quad \tau_2^{-1} = 2\tau_1^{-1}. \tag{14}$$

Соответственно, для $\omega_0 = 10^8$ с$^{-1}$ и $J/\varepsilon_F = 0.1$ получаем заметную величину $\tau_1^{-1} \approx$ $\approx 3 \cdot 10^7$ с$^{-1}$, а для $J/\varepsilon_F = 0.01$ $\tau_1^{-1} \approx 3 \cdot 10^5$ с$^{-1}$.

Если $\hbar\omega_0/T \ll 1$, получаем $\tau_1^{-1} = \nu$, $\tau_2^{-1} = 3\nu/2$.

Заметим, что спин электрона мюония релаксирует также и на стохастических ядерных полях $b \sim 1$–5 Гс (при этом релаксацией спина мюона на стохастических ядерных полях можно пренебречь) со скоростью порядка $|\gamma_e|b \sim 10^7$–$5 \cdot 10^7$ с$^{-1}$. Так как спин-спиновая связь в атоме Mu не «разорвана», это затухание будет передаваться мюону. Поэтому эксперимент следует проводить в металлах с нулевыми ядерными спинами (например, в $Mg^{24,26}$, $Ti^{46,48,50}$ и др.). Большинство металлов имеют стабильные изотопы с нулевым спином (см., например, [9]). Эксперименты в нулевом магнитном поле, по-видимому, представляют простейший путь для обнаружения мюония.

4. Рассмотрим теперь область высоких температур $T \gg \hbar\omega, \hbar\omega_0$, когда релаксационное уравнение сводится к уравнению Вангснесса–Блоха. Решение уравнения (10) для поперечной поляризации $P_\perp = P_x + iP_y$ дает

$$P_\perp(t) = \sum_{k=1}^{4} A_k \exp\left(\frac{\lambda_k\omega_0 t}{2}\right). \tag{15}$$

Здесь λ_k — корни характеристического уравнения [2, 5, 10, 11]

$$(\lambda + a)(\lambda + a + \gamma)(\lambda + b)^2 + (2\lambda + a + b)(2\lambda + a + b + \gamma) = 0, \tag{16}$$

где $a = 2i\zeta x$, $b = \gamma - 2ix$, $\zeta = 1/207$, $\gamma = 4\nu/\omega_0$, $x = \omega/\omega_0$ [2)].

Решим уравнение (16) при $x, \gamma \ll 1$ (т.е. $\nu \ll \omega_0$, $\omega \ll \omega_0$) Для $\nu \sim 10^8 T$ с$^{-1}$ и $\alpha \sim 10^{-2}$ это условие требует $T \sim 0.01$–0.1 K, $B \sim 5$ Гс. При решении мы пренебрегли величиной ζx по сравнению с γ и x.

Пусть $\gamma \ll x$. Тогда

[2)] Отметим, что в работах [5, 10, 11] корни характеристического уравнения вычислены с меньшей точностью.

$$P_\perp(t) = \exp(-\nu t)\exp\left(\frac{i\omega t}{2}\right)\left\{\exp\left(-\frac{\nu t}{2}\right)\cos(\omega_0 t) + \right.$$
$$\left. + \frac{1}{2}\left[\exp\left(-i\frac{\omega^2}{4\omega_0}t\right) + \exp(-\nu t)\exp\left(i\frac{\omega^2}{4\omega_0}t\right)\right]\right\}\frac{P_\perp(0)}{2}. \quad (17)$$

Отметим, что два последних слагаемых, которым соответствуют триплет-триплетные переходы ω_{12} и ω_{23} соответственно затухают с разными скоростями. При $\gamma \to 0$ формула (17) дает поляризацию спина мюона в «вакуумном» мюонии.

Пусть $\gamma \sim x$. Тогда $\lambda_{1,2} = -3\gamma/4 + i(x \pm 2)$, $\lambda_3 = -\gamma/2 + ix(1 - x^2/2)$, $\lambda_4 = -\gamma + ix(1 + x^2/2)$. При этом поляризация имеет вид

$$P_\perp(t) = \exp(-\nu t)\exp\left(\frac{i\omega t}{2}\right)\left[\exp\left(-\frac{\nu t}{2}\right)\cos(\omega_0 t) + \left(1 - i\frac{\omega}{4\nu}\right)\times\right.$$
$$\left.\times \exp\left(-i\frac{\omega^3}{4\omega_0^2}t\right) + i\frac{\omega}{4\nu}\exp(-\nu t)\exp\left(i\frac{\omega^3}{4\omega_0^2}t\right)\right]\frac{P_\perp(0)}{2}. \quad (18)$$

Отметим принципиальное отличие двух последних слагаемых в формуле (18) от соответствующих слагаемых в формуле (17). Во-первых, в частотах, соответствующих триплет-триплетным переходам, вместо квадратичной по полю добавки наблюдается кубическая, во-вторых, изменился вид амплитуд, отвечающих этим переходам.

В случае $x \ll \gamma$ имеем

$$P_\perp(t) = \exp(-\nu t)\left[\exp\left(-\frac{\nu t}{2}\right)\cos(\omega_0 t) + \exp\left(-\frac{i\omega t}{2}\right)\right]\frac{P_\perp(0)}{2}. \quad (19)$$

Осцилляции поляризации с частотой порядка ω_0 будут наблюдаться при $\nu \ll \omega_0$ и для продольной поляризации. При $\nu \sim 10^8 T$ с$^{-1}$ необходимо, чтобы $T \sim 0.01$–0.1 K, $B \sim 50$ Гс. Имеем [2, 5]

$$P_\parallel(t) = \frac{1}{1+x^2}\left[(1+2x^2)\exp\left(-\frac{t}{\tau_1}\right) + \exp(-2\nu t)\cos(\omega_{24}t)\right]\frac{P_\parallel(0)}{2}, \quad (20)$$

где $\omega_{24} = \omega_0\sqrt{1+x^2}$, $\tau_1^{-1} = \nu/(1+x^2)$.

5. Интересно исследование средней продольной поляризации

$$\langle P\rangle = \frac{1}{\tau_\mu}\int_0^\infty \exp\left(-\frac{t}{\tau_\mu}\right)P_\parallel(t)\mathrm{d}t, \quad (21)$$

Здесь $\tau_\mu = 2.2\cdot 10^{-6}$ с — среднее время жизни мюона. Получаем

$$\langle P\rangle = \frac{1}{1+\tau_\mu\nu}\frac{P(0)}{2}. \quad (22)$$

Температурная зависимость $\langle P(T)\rangle$ (при $T \sim 0.01$–0.1 K) позволяет уточнить значение обменного интеграла.

Как было указано в работе [12], весьма перспективен поиск атома Mu в сверхпроводниках, где концентрация электронов с неспаренными спинами спадает с температурой по экспоненциальному закону $\exp(-\Delta/T)$. Можно ожидать, что частота переворотов спина электрона мюония ν ведет себя аналогичным образом, если локальное искажение, вызываемое одиночной парамагнитной примесью (мюонием), меньше длины корреляции ξ в сверхпроводнике (см., например, [13]). Там же было отмечено, что, в принципе, μSR-методом можно таким образом измерять ширину энергетической щели Δ. Впервые мюоний наблюдался в соединении Rb_3Co_{60} в работе [14]. Сейчас мюоний наблюдается в различных фулеренах [15].

6. Ситуация $\nu \gg \omega_0$ представляется наиболее распространенной. Она подробно исследовалась, например, в работах [1, 2, 5]. Напомним, что в пределе, когда справедливо уравнение Вангснесса–Блоха (например, $B = 10^2$–10^3 Гс, $T \geq 1$ К), продольная поляризация экспоненциально затухает с характерной скоростью [1, 2, 5]

$$\tau_1^{-1} = \nu\omega_0/(4\nu^2 + \omega^2 + \omega_0^2), \tag{23}$$

которая имеет максимум $\tau_{max}^{-1} = 1/(4\sqrt{\omega^2 + \omega_0^2})$ при температуре

$$T^* = \frac{\hbar}{2\pi}\left(\frac{\varepsilon_F}{3J}\right)^2 \sqrt{\omega^2 + \omega_0^2}.$$

Например, при $B = 100$ Гс $T^* \sim 1$ К, $\tau_{max}^{-1} \sim 10^7$ с$^{-1}$; при $B = 10^3$ Гс $T^* \sim 10$ К, $\tau_{max}^{-1} \sim 10^6$ с$^{-1}$. Характерная температурная зависимость скорости деполяризации продольной поляризации приведена в работах [1, 2]. Для «голого» мюона скорость релаксации продольной поляризации порядка $\gamma_\mu b \sim 10^5$–$5 \cdot 10^5$ с$^{-1}$, что существенно отличается от случая «кулоновского мюония».

Другой эффект при образовании мюония в металлах будет наблюдаться в сильных магнитных полях ($\hbar\omega \gg T$). В полях $B \sim 10^3$–10^4 Гс этот предел достигается при температуре $T \leq 0.01$ К. Частота прецессии поперечной поляризации (см., [5])

$$\Omega_\perp = \zeta\omega + \omega_0/2 \tag{24}$$

отличается от частоты прецессии «голого» мюона сдвигом $\omega_0/2 \sim 10^8$ с$^{-1}$ при $\alpha \sim$ $\sim 10^{-2}$. В экспериментах [16] достигнуты рекордные результаты по разрешению частоты прецессии $\Delta\omega \sim 10^{10}$ с$^{-1}$, поэтому указанная возможность измерения сдвига частоты $\omega_0/2$ легко осуществима.

В заключение рассмотрим условия, когда при низких температурах ($T < 1$ К) может оказаться существенным второй порядок теории возмущений при рассмотрении рассеяния электрона проводимости металла на атоме мюония (эффект Кондо). Используя борновское приближение, формулу для эффективной частоты «переворотов» спина электрона мюония следует исправить. Согласно качественной теории [7, 17], параметр ν следует заменить параметром

$$\tilde{\nu} = \nu(1 + \Delta)^2, \quad \text{где} \quad \Delta \sim \frac{J}{\varepsilon_F} \ln \frac{\varepsilon_F}{\max(\hbar\omega, \hbar\omega_0, T)}. \tag{25}$$

Анализ показывает, что при $\nu \leq 10^8 T$ с$^{-1}$, когда возможно наблюдение атома Mu по двухчастотной прецессии (формулы (17) и (18)), поправка Δ несущественна. Если $\nu >$ $> 10^8 T$ с$^{-1}$, наиболее надежным представляется наблюдение атома Mu по сдвигу частоты прецессии поперечной поляризации в сильном магнитном поле.

Таким образом, приведенные рекомендации позволяют экспериментально обнаружить атом мюония в металлах в диапазоне температуры $T \sim 0.01$–0.1 К и $T \geq 1$ К.

Авторы выражают благодарность профессору Д. Кондо за полезные дискуссии.

Литература

1. Ю. М. Белоусов, В. Н. Горелкин, А. Л. Микаэлян, В. Ю. Милосердин, В. П. Смилга, УФН **129**, 3 (1979).
2. В. П. Смилга, Ю. М. Белоусов, *Мюонный метод исследования вещества*, Наука, Москва (1991).
3. O. Hartmann, E. Karlsson, L. O. Norlin et. al., Hyp. Int. **4**, 828 (1978).
4. T. M. S. Johnson, K. H. Chow, S. Dunsiger et al., in *Proc. of the μSR-96 conference, Nikko, Japan* (1996).
5. Ю. М. Белоусов, В. Н. Горелкин, В. П. Смилга, ЖЭТФ **72**, 2189 (1977).
6. К. Блум, *Теория матрицы плотности и ее приложения*, Мир, Москва (1984).
7. А. А. Абрикосов, *Основы теории металлов*, Наука, Москва (1987).
8. Ч. Киттель, *Квантовая теория твердых тел*, Наука, Москва (1972).
9. С. В. Вонсовский, *Магнетизм микрочастиц*, Наука, Москва (1974).
10. И. Г. Ивантер, В. П. Смилга, ЖЭТФ **54**, 559 (1968).
11. И. Г. Ивантер, В. П. Смилга, ЖЭТФ **55**, 1521 (1968).
12. В. Н. Горелкин, В. П. Смилга, ЖЭТФ **69**, 949 (1975).
13. А. А. Абрикосов, Л. П. Горьков, И. Е. Дзялошинский, *Методы квантовой теории поля в статистической физике*, Физматгиз, Москва (1962).
14. W. A. MacFarline, R. F. Kiefl, K. H. Chow et al., Hyp. Int. **86**, 467 (1994).
15. W. A. MacFarline, R. F. Kiefl, J. E. Fischer et al., in *Proc. of the μSR-96 conference, Nikko, Japan* (1996).
16. R. F. Kiefl, E. Holzschuh, H. Keller et al., Hyp. Int. **53**, 90 (1984).
17. У. Харрисон, *Теория твердого тела*, Мир, Москва (1972).