

Флуктуационное уширение ЭПР линий Mn^{2+} в несоразмерной фазе кристаллов Rb_2ZnCl_4

© М.П. Трубицын

Днепропетровский государственный университет,
320625 Днепропетровск, Украина

(Поступила в Редакцию 29 декабря 1998 г.)

Исследованы ЭПР спектры ионов Mn^{2+} в окрестности перехода из параэлектрической в несоразмерно модулированную фазу кристаллов Rb_2ZnCl_4 . При охлаждении ниже точки перехода $T_i = 304$ К наблюдалось расщепление резонансных линий в сингулярный спектр. В рамках одногармонической модели обсуждаются вклады флуктуаций амплитуды и фазы волны несоразмерных смещений в локальную ширину сингулярных спектров. Показано, что аномалии локальной ширины сингулярных пиков, наблюдаемые в низкотемпературной окрестности T_i , обусловлены амплитудными флуктуациями.

Возникновение несоразмерной волны решеточных смещений ниже точки T_i перехода из высокотемпературной параэлектрической (ПФ) в низкотемпературную модулированную несоразмерную фазу (НСФ) приводит к потере трансляционной периодичности вдоль оси модуляции. В результате одиночные линии магнитного резонанса, наблюдающиеся в соразмерной ПФ, при охлаждении ниже T_i трансформируются в квазипрерывное распределение резонансных полей (частот), ограниченное по бокам максимумами интенсивности поглощения (сингулярными пиками) [1,2]. Конденсация дважды вырожденной в ПФ мягкой моды при приближении к T_i сверху приводит к снятию вырождения и появлению в колебательном спектре несоразмерных кристаллов двух мод, которые в гармоническом приближении могут быть сопоставлены колебаниям амплитуды и фазы волны несоразмерных смещений [1,3].

В настоящей работе проведено изучение ЭПР центров Mn^{2+} , изовалентно замещающих ионы Zn^{2+} в решетке кристаллов Rb_2ZnCl_4 [4,5]. В ПФ кристаллическая решетка Rb_2ZnCl_4 соответствует пространственной группе симметрии $D_{2h}^{16} - Pnam$ ($b > a > c$). Переход в НСФ происходит при охлаждении ниже $T_i = 303$ К и сопровождается возникновением периодических структурных искажений с волновым вектором $\mathbf{q}_i = (1/3 - \delta)\mathbf{a}^*$ [6,7]. В ПФ центры Mn^{2+} расположены в зеркальной плоскости (\mathbf{ab}) и обладают кратностью $k_m = 2$. Тонкая структура спектров Mn^{2+} была описана в квазиромбическом приближении со следующими значениями параметров спин-гамильтониана (СГ): $g = 2.004$, $|D| = 449 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^{-1}$, $|E| = 85 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^{-1}$ [5]. При переходе в НСФ зеркальная плоскость (\mathbf{ab}) локально нарушается и экспериментально регистрируется расщепление резонансных линий в сингулярный спектр, что свидетельствует о понижении точечной симметрии парамагнитных центров до триклинной. Цель данной работы — изучение вкладов флуктуаций модуляционной волны в локальную ширину сингулярных спектров.

1. Экспериментальные результаты

Исследуемые образцы были приготовлены в виде параллелепипедов $2 \times 2 \times 3 \text{ mm}^3$ из монокристаллов, выращенных по методу Чохральского [5]. ЭПР спектры регистрировались в X-диапазоне. Температура образцов регулировалась нагреванием в парах жидкого азота и стабилизировалась с точностью 0.1 К.

При температурных измерениях регистрировался высокополевой электронный переход $|M_S| = 3/2 \leftrightarrow 5/2$ для ориентаций внешнего магнитного поля \mathbf{H} вдоль оси \mathbf{a} и при малых отклонениях (\mathbf{H}) от \mathbf{a} в сторону оси \mathbf{c} . Температурные зависимости соответствующего сверхтонкого секстета, измеренные в процессе охлаждения через переход, представлены на рис. 1 и 2, а.

Для главной ориентации $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$ (рис. 1) исследуемая группа линий не претерпевает заметных изменений по мере приближения к точке перехода сверху. Ниже $T_i = 304.4$ К происходит плавное расщепление секстета. Каждая из сверхтонких компонент трансформируется в специфически сингулярный контур и в НСФ наблюдается шесть сингулярных спектров, смещенных друг относительно друга на величину сверхтонкой константы. Величина сингулярного расщепления при понижении температуры растет и ниже $\sim T_i - 10$ К превышает расстояние между соседними сверхтонкими линиями (~ 8 мТ). Как видно из рис. 1, при охлаждении в интервале НСФ положение высокополевой шестерки сингулярных пиков от температуры зависит слабо, в то время как низкополевая группа пиков заметно смещается в сторону низких полей. Отметим асимметрию высоко- и низкополевой сингулярностей, соответствующих одиночной сверхтонкой компоненте, что проявляется в отличии их локальных ширин.

При отклонении внешнего магнитного поля \mathbf{H} от оси \mathbf{a} на 7° (рис. 2, а) температурная трансформация спектров в области перехода происходит более резко. По мере приближения к T_i^+ сверху сверхтонкий секстет значительно уширяется вследствие вклада низкочастотных флуктуаций параметра порядка [8,9]. Ниже T_i каждая из сверхтонких компонент расщепляется в спектр, ограни-

ченный двумя сингулярными пиками. Для данной ориентации положения обеих сингулярностей существенно зависят от температуры. Обе группы сингулярных пиков проявляют аномалии локальных ширин вблизи T_i^- , причем для низкополюсового сингулярного секстета эта аномалия выражена сильнее. Характерно, что для отклоненной ориентации асимметрия сингулярного спектра проявляется более отчетливо и наблюдается как в непосредственной близости к точке перехода, так и по мере удаления в глубь НСФ.

В работе [10] показано, что температурное поведение положения сингулярных пиков, соответствующих переходу $|M_S| = 3/2 \leftrightarrow 5/2$ в высокотемпературной области НСФ кристаллов $Rb_2ZnCl_4:Mn^{2+}$, может быть удовлетворительно описано на основе простой "локальной" модели [1]. Вместе с тем асимметрию сингулярных спектров (рис. 1 и 2, а) не удается объяснить в рамках приближения "жесткой" решетки, ограничиваясь рассмотрением зависимости положения резонансных сигналов от фазы модуляционной волны. Очевидно, что локальная ширина резонанса содержит флуктуационные вклады и, следовательно, также является функцией фазы несоразмерной волны. Можно предположить, что учет этого обстоятельства позволит описать асимметричную форму спектрального контура и выделить вклады амплитудных и фазовых флуктуаций в локальное уширение сингулярного спектра.

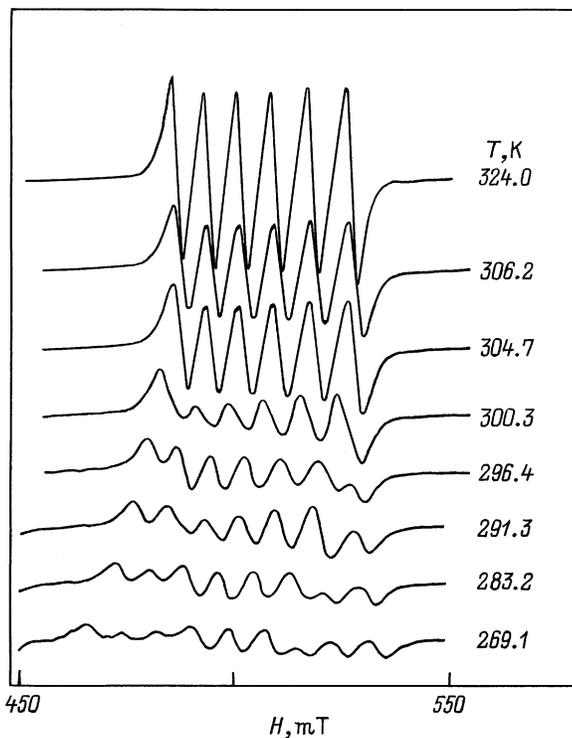


Рис. 1. Фрагмент ЭПР спектра кристаллов $Rb_2ZnCl_4:Mn^{2+}$, соответствующий сверхтонкой группе $|M_S| = 3/2 \leftrightarrow 5/2$, в окрестности $T_i = 304.4$ К. $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$.

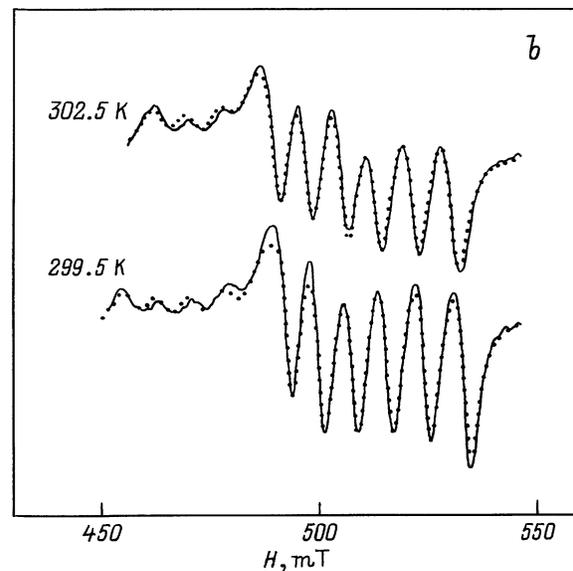
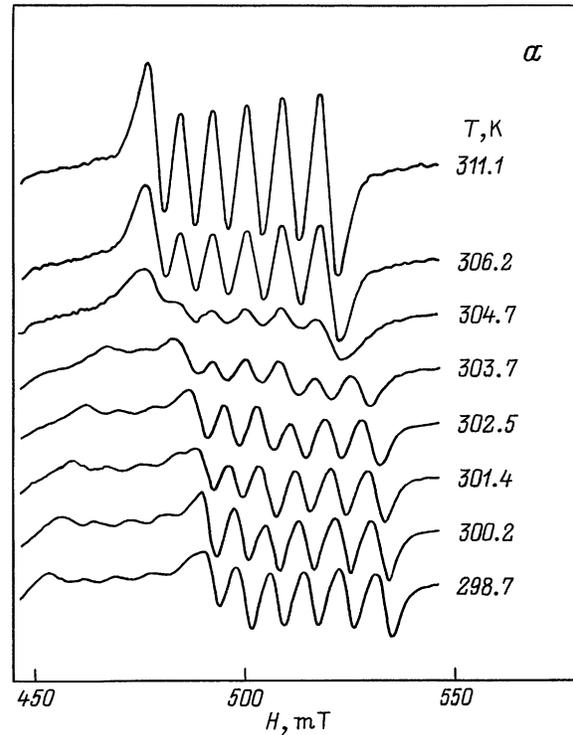


Рис. 2. а — сверхтонкая группа $|M_S| = 3/2 \leftrightarrow 5/2$ при охлаждении через переход. $\angle \mathbf{H}, \mathbf{a} = 7^\circ$, $\mathbf{H} \perp \mathbf{b}$; б — сплошными линиями представлены экспериментальные спектры, точками — расчетные.

2. Флуктуационные вклады в локальную ширину сингулярного спектра

При описании спектров ЭПР в модулированной фазе волну несоразмерных смещений \mathbf{U} можно принять в качестве "возмущающего" параметра и соответствующий

СГ представить в виде

$$\mathcal{H}_{INC} = \mathcal{H}_{PP} + U\mathcal{H}' \quad (1)$$

Здесь \mathcal{H}_{PP} — квазиромбический СГ, использованный ранее [5] при описании спектров Mn^{2+} в ПФ с приведенными выше параметрами; ”возмущающий” СГ \mathcal{H}' содержит ”триклинные” спиновые операторы, ответственные за понижение локальной симметрии активных центров ниже T_i [11]. В соответствии с (1) резонансные поля могут быть представлены в виде разложения по степеням зависящего от времени несоизмеренного параметра порядка $U(t) = U_0 + \delta U(t)$

$$\begin{aligned} H_R(t) &= H_0 + AU + \frac{1}{2}BU^2 + \dots \\ &= \left[H_0 + AU_0 + \frac{1}{2}B(U_0^2 + \langle \delta U^2 \rangle) \right] \\ &\quad + \left\{ (A + BU_0)\delta U + \frac{1}{2}B(\delta U^2 - \langle \delta U^2 \rangle) \right\}. \quad (2) \end{aligned}$$

В выражении (2) H_0 соответствует позиции резонансной линии в ПФ и рассчитывается при помощи СГ \mathcal{H}_{PP} . Параметры разложения A, B зависят от положения активного центра в элементарной ячейке и направления внешнего магнитного поля относительно осей кристалла. При этом коэффициент A при линейном члене определяется диагональными матричными элементами, а параметр B при квадратичном члене содержит недиагональные матричные элементы ”возмущающего” СГ \mathcal{H}' . В последней записи разложения (2) в скобках выделены статическая и динамическая части. Статическая определяет индуцируемое параметром порядка смещение положения резонанса, тогда как динамическая описывает вклад флуктуаций в ширину и форму резонансной линии.

Поскольку в высокотемпературной области НСФ структурные смещения определяются первой гармоникой модуляционной волны, параметр порядка может быть представлен в виде $U = \rho \cos \varphi(z)$, где $\rho = \text{const}(z)$, $\varphi = q_1 z + \psi_0$. С учетом (2) положения сингулярных пиков определяются условием [1]

$$|d\langle H_R \rangle / d\varphi| = 0.$$

Вклады флуктуаций в локальную ширину сингулярного спектра можно выразить через второй момент резонансного сигнала, соответствующего определенному значению фазы модуляционной волны

$$\delta H^2 = 4 \left(\langle H_R^2 \rangle - \langle H_R \rangle^2 \right).$$

Рассматривая локальную ширину резонанса, следует учесть, что вблизи точки перехода мягкомодовая динамика обычно передемпфирована. В этом случае спинрешеточная релаксация определяется однофононными процессами, и при рассмотрении критических вкладов

в динамической части (2) достаточно удерживать члены, линейные по флуктуации критической переменной $\delta U = \delta \rho \cos \varphi_0 - \delta \varphi \sin \varphi_0$, где амплитуда и фаза представлены в виде суммы статической и флуктуирующей частей $\rho(t) = \rho_0 + \delta \rho(t)$, $\varphi(t) = \varphi_0 + \delta \varphi(t)$. Динамическим двухфононным членом $\{1/2B(\delta U^2 - \langle \delta U^2 \rangle)\}$ в (2) вблизи перехода можно пренебречь. Кроме того, рассматривая лишь длинноволновую часть спектра вблизи критического значения q_i , можно считать параметры A и B независимыми от волнового вектора флуктуаций параметра порядка. Следовательно, они могут быть приняты одинаковыми для статической и динамической частей разложения (2).

Если влиянием квадратичного члена в (2) можно пренебречь ($B = 0$), спектральный контур ограничивается двумя сингулярными пиками, соответствующими активным центрам, максимально смещенным в волне несоизмеренной дисторсии. Положения сингулярных пиков даются выражениями

$$H_{L1,L2} = H_0 \pm H_1, \quad (\varphi_0 = 0, \pi);$$

$$H_1 = A\rho_0 \sim (T_i - T)^\beta, \quad (3a)$$

где β — критический индекс параметра порядка. Из (3a) видно, что при охлаждении сингулярные пики смещаются симметрично относительно H_0 в соответствии с ростом амплитуды ρ_0 . Для случая линейной связи резонансных полей с параметром порядка зависимость локальной ширины от фазы φ_0 в динамическом пределе [1,12] можно представить в виде

$$\begin{aligned} \delta H(\varphi_0) &\sim h_1^2 \left\{ \Delta_\rho(0) \cos^2(\varphi_0) + \Delta_\varphi(0) \sin^2(\varphi_0) \right\}, \\ h_1 &= H_1 / \rho_0. \quad (3b) \end{aligned}$$

Здесь $\Delta_{\rho,\varphi}(0)$ — параметры, связанные со спектральной плотностью амплитудных и фазовых флуктуаций. Поскольку в случае линейной связи резонансные поля определяются диагональными матричными элементами СГ \mathcal{H}' , критические вклады в ширину линии отражают спектральную плотность флуктуаций на нулевой частоте [13]. Выражение (3b) показывает, что амплитудные флуктуации вносят максимальный вклад в локальные ширины сингулярных пиков $H_{L1,L2}$ (3a), тогда как вклад фазовых флуктуаций максимален в центральной пологой части сингулярного спектра $H_R = H_0$ ($\varphi_0 = \pm\pi/2$).

Если по симметричным требованиям линейный член в (2) запрещен ($A = 0$), спектральный контур ограничен двумя сингулярными пиками, соответствующими несмещенным ($\varphi_0 = \pm\pi/2$) и максимально смещенным ($\varphi_0 = 0, \pi$) активным центрам в модуляционной волне

$$H_{Q1} = H_0, \quad (\varphi_0 = \pm\pi/2);$$

$$H_{Q2} = H_0 + \frac{1}{2}H_2, \quad (\varphi_0 = 0, \pi);$$

$$H_2 = B\rho_0^2 \sim (T_i - T)^{2\beta}. \quad (4a)$$

Положение сингулярного пика H_{Q1} соответствует позиции линии H_0 в высокотемпературной фазе, тогда

как другой пик H_{Q2} при охлаждении смещается относительно H_0 пропорционально квадрату амплитуды $\rho_0^2 \sim (T_i - T)^{2\beta}$. Удерживая в динамической части (2) член, содержащий первую степень по δU , для локальной ширины в пределе быстрых флуктуаций [12] можно получить

$$\begin{aligned} \delta H(\varphi_0) \sim h_2^2 \left\{ \Delta_\rho(\omega_{RES}) \cos^4(\varphi_0) \right. \\ \left. + \Delta_\varphi(\omega_{RES}) \cos^2(\varphi_0) \sin^2(\varphi_0) \right\}, \\ h_2 = H_2/\rho_0. \end{aligned} \quad (4b)$$

При квадратичной связи с параметром порядка резонансные поля определяются недиагональными матричными элементами СК \mathcal{H}' . Поэтому параметры $\Delta_{\rho,\varphi}(\omega_{RES})$ в (4b) являются мерой спектральной плотности локальных флуктуаций на частотах ЭПР $\omega_{RES} \sim 10^{10}$ Hz [13]. Согласно (4a), (4b), амплитудные флуктуации вносят вклад в локальную ширину сингулярного пика H_{Q2} , тогда как вклад фазовых флуктуаций будет максимален в срединной части сингулярного спектра при $H_R = H_0 + (1/4)H_2$ ($\varphi_0 = \pm\pi/4$). При этом локальная ширина пика H_{Q1} ($\varphi_0 = \pm\pi/2$) флуктуационных вкладов не содержит и определяется некритическими процессами.

Если в разложении (2) необходим одновременный учет линейного и квадратичного членов, причем линейный вклад доминирует ($H_1 > |H_2|$), при переходе в НСФ спектр будет ограничен двумя сингулярными пиками

$$H_{L1,L2} = H_0 \pm H_1 + \frac{1}{2}H_2, \quad (\varphi_0 = 0, \pi). \quad (5a)$$

При рассмотрении флуктуационных вкладов следует иметь в виду, что динамическая составляющая линейного члена определяется спектральной плотностью квазистатических флуктуаций, тогда как динамическая часть квадратичного члена определяется флуктуациями с частотами резонанса $\sim 10^{10}$ Hz. Упростить выражение для локальной ширины можно в предположении, что спектральная плотность критических флуктуаций существенно не меняется в частотном интервале $0-0.32 \text{ cm}^{-1}$ ($\sim 10^{10}$ Hz). По-видимому, для Rb_2ZnCl_4 это требование выполняется в широкой температурной окрестности T_i , где мягкая мода сильно передемпфирована [14]. Тогда для локальной ширины в пределе быстрых движений можно получить следующее выражение:

$$\begin{aligned} \delta H(\varphi_0) \sim (h_1 + h_2 \cos(\varphi_0))^2 \\ \times \left\{ \Delta_\rho \cos^2(\varphi_0) + \Delta_\varphi \sin^2(\varphi_0) \right\}. \end{aligned} \quad (5b)$$

Отсюда видно, что когда в разложении (2) доминирует линейный член и в НСФ наблюдаются два линейно расщепленных сингулярных пика, их локальные ширины будут существенно различаться за счет квадратичного

вклада. Для пика H_{L1} ($\varphi_0 = 0$) локальная ширина $\delta H_{L1} \sim (h_1 + h_2)^2 \Delta_\rho$, тогда как для H_{L2} ($\varphi_0 = \pi$) ширина $\delta H_{L2} \sim (h_1 - h_2)^2 \Delta_\rho$.

Величины $\Delta_{\rho,\varphi}$, входящие в (3b)–(5b), связаны с соответствующими восприимчивостями $\chi_{\rho,\varphi}$ амплитудной и фазовой мод и в динамическом приближении [12] могут быть представлены в виде

$$\Delta_\alpha \sim k_B T \sum_q \chi_\alpha^2(q),$$

где k_B — постоянная Больцмана, $\alpha = \rho, \varphi$ и суммирование проводится по волновым векторам в зоне Бриллюэна. Представляя χ_α в виде восприимчивости гармонического осциллятора с затуханием, можно показать, что вклад амплитудной моды критически зависит от близости к точке перехода: $\Delta_\rho \sim (T_i - T)^{-\nu}$ (ν — критический индекс корреляционной длины) [1,12]. Напротив, вклад фазовой моды температурно независим. В случае идеальной несоразмерно модулированной структуры восприимчивость χ_φ бесконечно велика при критическом значении волнового вектора q_i во всем температурном интервале НСФ, для которого справедливо одногармоническое приближение. При наличии эффектов ”зацепления” модуляционной волны за несовершенство структуры в спектре фазовых флуктуаций возникает щель. В этом случае восприимчивость χ_φ и соответственно вклад Δ_φ фазовых флуктуаций в локальную ширину ЭПР сигнала по-прежнему температурно независимы и определяются величиной щели в спектре фазовой моды [1,3].

В следующем разделе будет показано, что приведенные соотношения позволяют описать основные особенности экспериментальных спектров (рис. 1, 2, a).

3. Обработка спектров и обсуждение результатов

Моделирование экспериментальных спектров в ПФ осуществлялось путем свертки производной лоренцевой функции с гауссовым распределением. Выходные параметры процедуры обработки — положение линии, а также однородная и неоднородная составляющие ее ширины, позволили достичь хорошего совпадения экспериментальных спектров с расчетными [9].

При моделировании спектров в НСФ, видимо, также было бы целесообразно использовать процедуру свертки лоренциана с гауссианом с целью выделения статических и динамических вкладов в локальную ширину сингулярного спектра. На практике однако при таком подходе процедура подгонки включает большое число параметров, надежность определения которых существенно снижается. Поэтому предполагать, что одиночному активному центру соответствует лоренциан, положение H_R и ширина δH которого определяются амплитудой и фазой несоразмерной волны. Спектральная форма моделировалась по методу наименьших средних квадратов

при помощи выражения

$$\int_0^{2\pi} L \left\{ [H - H_R(\varphi_0)] / \delta H(\varphi_0) \right\} d\varphi_0. \quad (6)$$

Поскольку для центров Mn^{2+} (**ab**) является плоскостью симметрии, нарушающейся при переходе в НСФ, для ориентации магнитного поля $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$ линейный член в разложении (2) запрещен. Температурное поведение положения сингулярных пиков (вставка на рис. 3) в основных чертах согласуется с выражениями (4а): положение высокополевой сингулярности H_{Q1} приблизительно соответствует экстрополированному в НСФ дрейфу H_0 , тогда как другая сингулярность H_{Q2} смещается в низкие поля ($H_2, B < 0$) [10]. При моделировании спектров, полученных в НСФ при $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$, в выражении (6) локальная ширина представлялась в виде, аналогичном (4b)

$$\delta H(\varphi_0) = \delta H_{BGR} + \left[\delta H_\rho \cos^4(\varphi_0) + \delta H_\varphi \cos^2(\varphi_0) \sin^2(\varphi_0) \right]. \quad (7)$$

В (7) через $\delta H_{\rho,\varphi}$ обозначены вклады амплитудных и фазовых флуктуаций. Величина δH_{BGR} принималась в качестве фоновой составляющей, не зависящей от φ_0 и дающей равномерный вклад на протяжении всего сингулярного спектра. Следует отметить, что при используемом методе анализа формы линии с удовлетворительной точностью могут быть определены локальные ширины сингулярных пиков. В соответствии с (5), (7) локальная ширина пика H_{Q1} ($\varphi_0 = \pm\pi/2$) определяется фоновой составляющей

$$\delta H_{Q1} = \delta H_{BGR}.$$

Напротив, локальная ширина пика H_{Q2} ($\varphi_0 = 0, \pi$) определяется суммой

$$\delta H_{Q2} = (\delta H_{BGR} + \delta H_\rho)$$

и соответственно должна отражать критическое поведение амплитудных флуктуаций при приближении к T_i^- . Вклад фазовых флуктуаций δH_φ существен лишь для центрального пологого участка несоразмерного спектра. При моделировании формы линии, среднеквадратичное отклонение расчетных спектров от экспериментальных малокритично по отношению к вариациям δH_φ . Поэтому процедура моделирования не позволяет надежно определить параметр δH_φ и сделать какие-либо выводы о его температурной зависимости. При подгонке расчетных спектров величина δH_φ статистически изменялась относительно среднего значения ~ 0.2 мТ в исследуемом интервале температур.

Полученные зависимости локальных ширин δH_{Q1} и δH_{Q2} сингулярных пиков представлены на рис. 3. Выше T_i приведена зависимость полной ширины сверхтонкой компоненты. Видно, что по мере приближения к точке

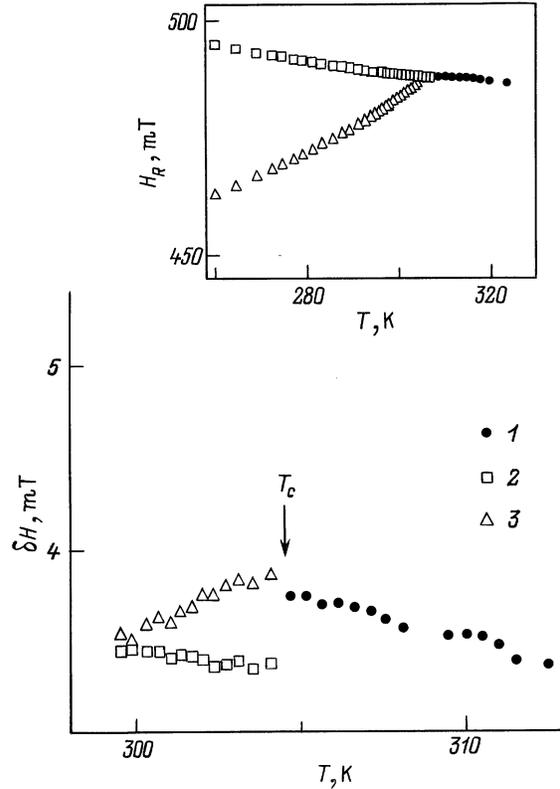


Рис. 3. Температурная зависимость ширины сверхтонкой компоненты перехода $|M_S| = 3/2 \leftrightarrow 5/2$ выше T_i (1) и локальных ширин сингулярных пиков δH_{Q1} (2) и δH_{Q2} (3) ниже T_i . $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$. На вставке — температурная зависимость положения сверхтонкой линии выше T_i и сингулярных пиков H_{Q1}, H_{Q2} в НСФ.

перехода сверху линия испытывает незначительное уширение, обусловленное вкладом недиагональных матричных элементов СГ \mathcal{H}' [9]. Локальная ширина δH_{Q2} низкополевой сингулярности вблизи T_i^- также испытывает слабую аномалию за счет вклада амплитудных флуктуаций. Ширина δH_{Q1} высокополевого сингулярного пика от температуры практически не зависит, что представляется естественным результатом отсутствия флуктуационных вкладов.

Для отклоненной ориентации $\angle \mathbf{H}\mathbf{a} = 7^\circ$ запрет на существование линейного члена в разложении (2) снимается, и последний вносит доминирующий вклад в положения сингулярных пиков, температурное поведение которых (вставка на рис. 4) хорошо описывается при помощи соотношений (5а) [10]. При моделировании спектров для локальной ширины использовалось следующее выражение, аналогичное (5b):

$$\delta H(\varphi_0) = \delta H_{BGR} + \left[h_1/h_2 + \cos(\varphi_0) \right]^2 \left\{ \delta H_\rho \cos^2(\varphi_0) + \delta H_\varphi \sin^2(\varphi_0) \right\}. \quad (8)$$

Очевидно, что при занулении линейного члена ($h_1 = 0$) соотношение (8) сводится к (7), использовавшемуся при

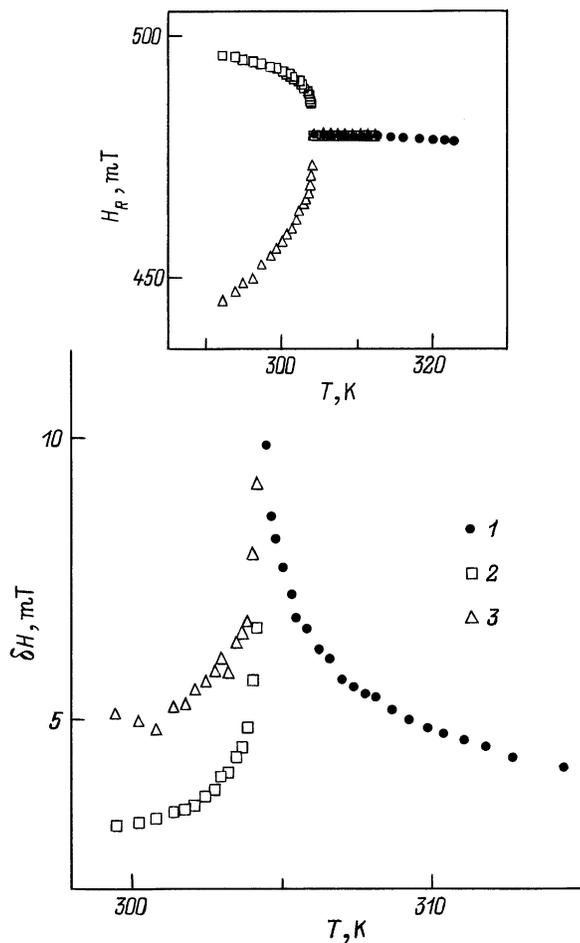


Рис. 4. Температурная зависимость ширины линии (1) выше T_i и локальных ширин сингулярных пиков δH_{L1} (2) и δH_{L2} (3) ниже T_i . $\angle \mathbf{H}, \mathbf{a} = 7^\circ$, $\mathbf{H} \perp \mathbf{b}$. На вставке — температурная зависимость положения линии в ПФ и сингулярных пиков H_{L1}, H_{L2} в НСФ.

обработке спектров, измеренных в главной ориентации внешнего магнитного поля. Отношение параметров h_1/h_2 определяется по положениям сингулярных пиков в соответствии с (5с) [10]. Сопоставление расчетных спектров с экспериментальными продемонстрировано на рис. 2, b. Как и ранее, анализ формы сингулярного спектра позволяет с достаточной точностью определить лишь ширины сингулярных пиков, которые в соответствии с (8) даются выражениями

$$\delta H_{L1,L2} = \delta H_{BGR} + [h_1/h_2 \pm 1]^2 \delta H_\rho, \quad (\varphi_0 = 0, \pi). \quad (9)$$

Полученные данные представлены на рис. 4. При охлаждении к точке перехода сверху резонансная линия испытывает четко выраженную аномалию ширины, которая, как показано в [9], обусловлена ростом спектральной плотности низкочастотных флуктуаций. Ниже T_i оба сингулярных пика также проявляют аномальное уширение. Хотя выражение (6), используемое при анализе формы

линии в НСФ, не позволяет разделить однородную и неоднородную составляющие аномального вклада в локальную ширину, естественно предполагать, что уширение пиков ниже T_i также обусловлено квазистатическими амплитудными флуктуациями. Примечательно, что низкочастотный сингулярный пик характеризуется большей локальной шириной как в непосредственной близости к точке перехода, так и по мере удаления от нее. На основе выражения (9) это объясняется разными знаками параметров $h_1 > 0$, $h_2 < 0$, о чем свидетельствует температурное поведение положения сингулярных пиков (вставка на рис. 4) [10].

Представленные результаты обработки экспериментальных спектров имеют качественный характер. Используемые при моделировании спектров выражения для локальной ширины получены в пределе быстрых флуктуаций [12] и не учитывают эффектов неоднородного уширения. Поэтому приведенные соотношения позволяют судить лишь об основных чертах и источниках флуктуационного уширения сингулярных спектров.

Ранее локальная ширина ЭПР спектров Mn^{2+} в НСФ кристаллов Rb_2ZnCl_4 была изучена авторами работы [15]. Сингулярные спектры, исследованные в [15] для главной и отклоненных ориентаций внешнего поля, были рассмотрены в предположении исключительно линейного вклада в локальную ширину, т. е. при обработке спектров использовалось выражение вида (3b). При этом для главной и отклоненной ориентаций считалось, что локальная ширина одного из сингулярных пиков определяется вкладом амплитудных, а другого — фазовых флуктуаций. Из температурных зависимостей локальных ширин сингулярных пиков были сделаны выводы о критическом поведении вклада амплитудных флуктуаций и о температурной независимости вклада фазовой моды.

Результаты, представленные в настоящей работе, получены в предположении доминирования однофононных процессов в окрестности точки перехода. На основании приведенных выражений показано, что для главной ориентации внешнего магнитного поля, обеспечивающей квадратичную связь резонансных полей с параметром порядка, ширина одного из пиков определяется флуктуациями амплитуды несоразмерной волны. Ширина другого пика не связана с флуктуационными вкладами фазовой моды, как предполагалось в [15], определяется лишь несущественными фоновыми механизмами и потому не проявляет каких-либо аномалий вблизи T_i . Анализ спектров, измеренных в отклоненной ориентации, также свидетельствует о неприменимости выражения вида (3b), использовавшегося в [15], так как влиянием квадратичного члена, ответственного за асимметрию сингулярного спектра, пренебречь нельзя. Резюмируя полученные данные, можно сказать, что при всех изученных ориентациях внешнего поля аномалии локальных ширин сингулярных пиков вблизи T_i^- определяются амплитудными флуктуациями. Моделирование формы экспериментальных спектров не позволяет надежно судить о температурном

поведении вклада фазовой моды в локальную ширину ЭПР сигнала. При исследованиях такого рода особенно очевидны преимущества фурье-радиоспектроскопии перед традиционной методикой ЭПР измерений.

Список литературы

- [1] R. Blinc. *Phys. Rep.* **79**, 5, 331 (1981).
- [2] K.A. Müller, J.C. Fayet. In: *Structural Phase Transitions II* / Ed. by K.A. Müller & H. Thomas. Springer-Verlag, Berlin (1991). **45**, p. 1.
- [3] А. Брус, Р. Каули. Структурные фазовые переходы. Мир, М. (1984). 407 с.
- [4] M. Pezeril, J. Emery, J.C. Fayet. *J. Phys. Lett.* **41**, L-499 (1980).
- [5] Т.М. Бочкова, О.Е. Бочков, С.А. Флерова, М.П. Трубицын. *ФТТ* **26**, 7, 2170 (1984).
- [6] K. Gesi, M. Iizumi. *J. Phys. Soc. Jap.* **46**, 2, 697 (1979).
- [7] K. Itoh, A. Hinasada, H. Matsunaga, E. Nakamura. *J. Phys. Soc. Jap.* **52**, 2, 664 (1983).
- [8] A. Kaziba, M. Pezeril, J. Emery, J.C. Fayet. *J. Phys. Lett.* **46**, L-387 (1985).
- [9] М.П. Трубицын, В.И. Пастухов, Т.М. Бочкова. *ФТТ* **41**, 1, 122 (1999).
- [10] М.П. Трубицын. *ФТТ* **41**, 4, 691 (1999).
- [11] С.А. Альтшулер, Б.М. Козырев. Электронный парамагнитный резонанс соединений элементов промежуточных групп. Наука, М. (1972). 672 с.
- [12] Th. Von Waldkirch, K.A. Müller, W. Berlinger. *Phys. Rev.* **B7**, 13, 1052 (1973).
- [13] G.F. Reiter, W. Berlinger, K.A. Müller, P. Heller. *Phys. Rev.* **B21**, 1, 1 (1980).
- [14] M. Quilichini, J.P. Mathein, M. Le Postollec, M. Toupry. *J. Physique* **43**, 787 (1982).
- [15] A. Kaziba, J.C. Fayet. *J. Physique* **47**, 239 (1986).