УСПЕХИ ФИЗИЧЕСКИХ НАУК

534.2 + 538.2

. . .

ДВОЙНЫЕ МАГНИТОАКУСТИЧЕСКИЕ РЕЗОНАНСЫ В КРИСТАЛЛАХ

В. А. Голенищев-Кутузов, Р. В. Сабурова, Н. А. Шамуков

СОДЕРЖАНИЕ

1.	Введение	•	•	•	•	•	•		201
2.	Методы наблюдения двойных магнитоакустических резонансов			•		•	•	•	203
3.	Двойной акустический ядерно-ядерный резонанс		,					•	206
4.	Двойной акустический электронно-ядерный резонанс		•	•					210
5.	Акустическая динамическая поляризация атомных ядер			•				•	214
6.	Двойной акустический электрон-электронный резонанс					•			215
7.	Акустические мазеры и квантовые детекторы фононов			•					216
8.	Заключение								220
Цı	итированная литература			•					221

1. ВВЕДЕНИЕ

Изучение взаимодействий между квантовыми системами в кристаллах и внешними переменными полями является одной из актуальных проблем физики твердого тела. Наиболее фундаментальные исследования, выполненные за последние два десятилетия, относятся к возбуждению вещества электромагнитными волнами радиочастотного и оптического дианазонов. Менее изучены процессы, связанные с распространением высокочастотных (10⁶—10¹¹ гц) упругих волн в твердых телах и требующие для своего объяснения квантовой концепции. К ним можно отнести взаимодействие ультразвуковых воли с решеточными колебаниями, с электронами проводимости в металлах и полупроводниках и ряд других процессов. В данной работе мы рассмотрим явления, относящиеся к резонансному взаимодействию упругих воли с ядерными и электронными спиновыми системами в различных классах кристаллов.

Передача акустической энергии спин-системе осуществляется посредством периодического возмущения звуком внутренних взаимодействий. В резонансных условиях, когда квант энергии упругой волны равен разности энергий спиновых уровней, такой процесс вызывает переходы спинов между различными уровнями; возможен и обратный процесс, при котором энергия спин-системы может когерентно переходить в упругие волны. Поглощение акустической энергии спин-системами имеет ту же природу, что и спин-решеточная релаксация, при которой энергия спин-системы передается в решетку посредством тепловых фононов. Существенное различие между этими процессами состоит в том, что релаксация, за исключением низких температур, происходит посредством

1 УФН, т. 119, вып. 2

© Главная редакция физико-математической, литературы издательства «Наука», «Успехи физических наук», 1976 г.

şà.

рамановского рассеяния фононов ¹ в широком спектре частот до 10^{13} гу, а в передаче акустической энергии спинам участвуют квазимонохроматические фононы ($\Delta \omega \sim 10^2 \ ru$), причем спектральная плотность энергии когерентных акустических фононов на 8—10 порядков выше плотности тепловых фононов.

Акустический магнитный резонанс является наиболее прямым методом изучения спин-фононных взаимодействий и получения информации о релаксационных процессах в спин-системах, об особенностях структуры и динамики внутрикристаллических электрических и магнитных полей. Особую ценность представляет использование акустического магнитного резонанса в изучении металлов, полупроводников и сверхпроводников, исследование которых с помощью электромагнитных полей обычно проводится только в поверхностном слое вещества.

Явление акустического магнитного ревонанса было предсказано в 1952 г. Альтшулером². В том же году Кастлер³ рассмотрел вопрос о насыщении спин-систем ультразвуком. В последующие годы, теоретическому изучению различных аспектов спин-фононных взаимодействий было посвящено большое количество работ, основное содержание которых изложено в ряде обзоров и монографий ⁴⁻⁸.

Однако темп экспериментальных исследований был значительно ниже, что связано с большой сложностью акустического эксперимента; для акустического ядерного магнитного резонанса основная трудность заключается в обнаружении ядерного поглощения, на 4—6 порядков меньшего, чем основное «решеточное» поглощение; для акустического электронного парамагнитного резонанса — в генерации и детектировании упругих колебаний на частотах 10^9-10^{10} гµ.

В настоящее время для изучения резонансного поглощения акустической энергии спин-системами применяют прямой и косвенные методы.

В методе прямого акустического резонанса, являющегося механическим аналогом обычных ЭПР и ЯМР, непосредственно измеряется дополнительное поглощение акустической мощности или изменение фазовой скорости при плавном прохождении магнитных полей через резонанс. Величина спин-фононных взаимодействий может быть определена по изменению поглощения ультразвука в момент резонанса.

Однако вследствие недостаточной чувствительности метод прямого акустического ЯМР не нашел широкого применения и акустический резонанс на ядерных спинах этим методом наблюдался в сравнительно небольшом количестве кристаллов: полупроводниках группы А_ШБу⁹, щелочногалоидных кристаллах⁶ и некоторых металлах^{10,11}.

Успешное обнаружение акустического ЭПР в 1959 г.¹² в первуюочередь обязано работам Баранского по разработке методов генерации гиперзвуковых колебаний в твердых телах ¹³. Акустический ЭПР в основном наблюдался на ионах элементов группы железа и редкоземельных элементов в диамагнитных матрицах. Обзор результатов по акустическому ЭПР приведен в работе ¹.

Метод прямого акустического ЭПР использовался для получения, данных о спин-фононной связи, причем в некоторых случаях он является практически единственным спектроскопическим методом исследования примесных парамагнитных ионов, например, ионов с четным числом электронов в кристаллах с симметрией ниже кубической.

Наиболее информативным и чувствительным является метод двойных магнитоакустических резонансов. На возможность его применения в акустическом магнитном резонансе впервые было указано Кастлером ^{3,14}.

Метод двойных резонансов состоит в одновременном возбуждении системы ядерных или электронных спинов двумя переменными полями.

одно из которых акустической, а другое — электромагнитной природы. Для наблюдения -акустически индуцированных спиновых переходов с помощью двойных резонансов необходимо, чтобы скорость индуцированного перехода была больше или сравнима со скоростями всех других процессов, определяющих устойчивое распределение заселенностей спиновых уровней.

Результаты исследований последних лет показывают, что двойные резонансы находят широкое применение в акустической магнитной спектроскопии атомов, имеющих малую концентрацию или обладающих слабой спин-фононной связью. Детектирование акустического магнитного резонанса в этом случае осуществляется посредством другой спин-системы, содержащейся в том же веществе, но с более «сильным» сигналом ЯМР или ЭПР. Магнитоакустические резонансы позволяют проводить непосредственные исследования механизмов спин-фононных взаимодействий, и оценивать величину этих взаимодействий. Наконец, процесс передачи акустической энергии от одной спин-системы к другой вовлекает в свою орбиту различные механизмы внутренних взаимодействий, что делает возможным глубокое изучение динамики спин-систем. Подобно тому, как развитие радиоспектроскопии послужило толчком для возникновения квантовой электроники, исследование спин-фононных взаимодействий явилось основой для создания квантовых усилителей и генераторов ультразвука фононных мазеров.

В последующих параграфах мы рассмотрим различные типы двойных магнитоакустических резонансов, приведем методику и результаты исследований, полученные этими методами.

2. МЕТОДЫ НАБЛЮДЕНИЯ ДВОЙНЫХ МАГНИТОАКУСТИЧЕСКИХ РЕЗОНАНСОВ

Методически двойные магнитоакустические эксперименты во многом сходны с двойными резонансами в радиоспектроскопии. Для регистрации сигналов ЯМР и ЭПР применяют общераспространенные схемы ¹⁵. Основное отличие состоит в использовании особых устройств для генерации и детектирования акустических колебаний в различных частотных диапазонах (10⁶—10¹⁰ гц). Возбуждение когерентных упругих колебаний в основном производится пьезопреобразователем, прикрепленным к одному из торцов исследуемого образца. Свободная поверхность преобразователя помещается в максимум электрического поля. На частотах (10⁶—10⁸ гц) используются пластинчатые преобразователи из кварца или ниобата лития. На более высоких частотах в последнее время нашли применение пленочные преобразователи (CdS, ZnO). Максимальная напряженность переменного электрического поля на преобразователе создается с помощью металлических обкладок, а на высоких частотах (10⁹—10¹⁰ гц) — посредством объемных резонаторов.

Определенную трудность при получении количественных оценок спин-фононного взаимодействия составляет измерение амплитуды акустической деформации. Существует несколько методов ее определения ^{6,16-19}.

1) Метод измерения эквивалентного электрического импеданса образда и преобразователя; 2) измерение времени жизни когерентных фононов; 3) оптический метод, использующий дифракцию световых волн на ультразвуковых колебаниях; 4) измерение э. д. с. индукции, возникающей при периодическом перемещении металлизированного торца образца в постоянном магнитном поле; 5) измерение смещения металлизированного торца образца динамическим конденсатором, образованным торцом образда и неподвижной металлической пластиной. С помощью этих методов можно

204 в. д. голенищев-кутузов, р. в. сабурова, н. а. шамуков

измерять амплитуду относительной деформации до 10^{-8} с точностью 10-20% на частотах 10^6-10^8 су. Однако на более высоких частотах точность измерений резко падает.

ىر كە

При наблюдении ядерно-ядерного акустического резонанса используют три независимые системы: возбуждения ультразвука, измерения амплитуды акустической деформации и контроля за интенсивностью сигнала ЯМР. Одна из наиболее распространенных схем такого типа приведена на рис. 1. Блок акустического насыщения позволяет возбуждать



Рис. 1. Спектрометр ядерно-ядерного акустического резонанса.

упругие волны как на фиксированной частоте, так и осуществлять частотное прохождение с различными скоростями в диапазонах ядерных переходов.

Одним из простых видов двойных резонансов является акустическое насыщение сигналов ЯМР или ЭПР. Резонансные акустические колебания постоянной частоты вызывают переходы между спиновыми уровнями; возникающее при этом изменение заселенностей уровней контролируется по изменению интенсивности сигналов ЯМР (ЭПР) с помощью соответствующих спектрометров непрерывного или импульсного типа излучения. Изучение формы линий акустического резонанса осуществляется путем частотного акустического прохождения линии ЯМР (ЭПР) при постоянных значениях внешнего магнитного поля и частоты спектрометра.

Общее выражение для акустического насыщения имеет вид

$$A/A_0 = (1 + w_a T_1)^{-1/r}, \tag{1}$$

где A_0 — первоначальная интенсивность сигнала, A — интенсивность при акустическом воздействии, $w_a \sim BG_{ij}^2 \varepsilon_j^2 g$ (ω) — вероятность акустического перехода, G_{ij} — элементы тензора спин-фононных взаимодействий, ε_j — элементы тензора акустических деформаций, B — коэффициент, зависящий от величин спина и магнитного квантового числа m, g (ω) коэффициент формы линий, T_1 — время спин-решеточной релаксации; r (≈ 1 —3) определяется структурой акустических волн в образце. Таким образом, константа спин-фононной связи определяется по степени насыщения (A/A_0) сигнала при известных параметрах, входящих в уравнение (1).

Независимые элементы тензора спин-фононных взаимодействий, число которых определяется симметрией кристалла, могут быть определены при различных направлениях распространения упругих продольных и поперечных волн относительно направления внешнего магнитного поля и кристаллографических осей.

Значительный интерес представляет метод акустического насыщения для исследования атомов, обладающих неэквидистантным спиновым спектром, поскольку процесс приближения такой системы к равновесию не описывается одним релаксационным параметром.

Разность населенностей каждой пары уровней $n_m = N_m - N_n$, при акустическом насыщении определенного спинового перехода с $\Delta m = \pm 1$ или $\Delta m = \pm 2$ описывается системой кинетических уравнений

$$\frac{d(n_m - n_0)}{dt} = \sum_i A_{mi} (n_i - n_0) + \sum_i B_{mi} n_i,$$
(2)

где n_0 — среднее значение n_m в отсутствие внешних возмущающих полей. Коэффициенты A_{mi} и B_{mi} соответственно описывают процессы спинрешеточной релаксации и внешнего акустического возмущения. Использование аналитических решений уравнений (2) для спинов $J = 3/2^{20}$ и $J = 5/2^{21}$ позволяет по степени акустического насыщения различных переходов оценивать вероятности акустических и релаксационных квадрупольных и дипольных переходов.

Для повышения чувствительности акустического ЭПР был предложен метод низкочастотной нерезонансной акустической модуляции спектров ЭПР ^{22,23}. Ультразвуковые деформации через спин-фононные взаимодействия вызывают изменения в спектре ЭПР, что в какой-то мере аналогично методу низкочастотной модуляции переменным магнитным полем. Однако такая методика при ее простоте имеет ограниченный характер.

В веществах с двумя сортами спинов методика наблюдения акустического ЯМР (ЭПР) одного сорта спинов с помощью другого имеет много общего с двойными резонансами в радиоспектроскопии ²⁴. Вначале внешнее магнитное поле H_0 устанавливается при фиксированном значении, соответствующем максимуму сигнала поглощения на основных атомах. Далее включается развертка акустического насыщения в области резонансных переходов исследуемых спинов и регистрируется изменение сигнала ЯМР (ЭПР) от основных атомов в зависимости от частоты ультразвука.

Величину спин-фононных взаимодействий можно оценить по изменению сигналов ЯМР (ЭПР) от основных атомов при акустическом и электромагнитном насыщении исследуемых атомов. Вероятности магнитного ($\sim B_m \gamma H_1$) и акустического ($\sim B_a G_{ij} \varepsilon_j$) переходов сравниваются при одинаковой величине насыщения ($B_a G_{ij} \varepsilon_j \approx B_m \gamma H_1$; здесь γ — гиромагнитное отношение, H_1 — напряженность электромагнитного поля). Например, для системы ядерных спинов $Al^{27} - Cr^{3+} в Al_2O_3^{25}$ константа *G* имеет значение 10^{-18} эрг, а рассчитанный по величине *G* эквивалентный коэффициент резонансного поглощения ультразвука $\alpha_n \sim 5 \cdot 10^{-11}$ с m^{-1} . Это значение α_n на два порядка меньше минимального коэффициента поглощения ультразвука, ранее определенного методом прямого акустического резонанса. Для наблюдения электронно-ядерного резонанса один из концов исследуемого образца помещают в объемный резонатор спектрометра ЭПР, а возбуждение ультразвука производится описанным выше методом с другого конца образца.

В магнитоакустическом электрон-электронном резонансе применяются две независимые микроволновые системы. Первая из них используется для генерации гиперзвуковых волн, которые возбуждают переходы между спиновыми уровнями, а вторая служит для контроля за изменением состояния электронной спин-системы при акустическом воздействии. Для одновременного возбуждения электронной спин-системы гиперзвуковым

206 в. а. голенищев-кутузов, р. в. сабурова, н. а. шамуков

и электромагнитным полями один конец образца вставляется в тороидальный «акустический» резонатор, а другой — в СВЧ резонатор спектрометра ЭПР (рис. 2).

По-видимому, наибольшую чувствительность можно получить с помощью оптического детектирования акустического ЭПР благодаря



1

Рис. 2. Спектрометр двойного акустического электрон-электронного резонанса.

большим величинам квантов оптических переходов. Для наблюдения акустического резонанса применяется та же техника, что и для оптического детектирования спектров ЭПР ²⁶.

3. ДВОЙНОЙ АКУСТИЧЕСКИЙ ЯДЕРНО-ЯДЕРНЫЙ РЕЗОНАНС

Для диэлектрических кристаллов основная информация о механизмах и константах спин-фононной связи была получена методом акустического насыщения. Сравнение экспериментальных и теоретических данных показало, что для ядерных спинов с J > 1/2 спин-фононные взаимодействия в беспримесных кристаллах осуществляются в основном посредством квадрупольных взаимодействий. При этом акустические колебания вызывают периодические смещения ионов. В результате этого возникают переменные градиенты внутрикристаллического электрического поля, которые взаимодействуют с квадрупольными моментами ядер. Для ядер со спином J = 1/2, не обладающих квадрупольным моментом, спин-фононная связь обусловлена ультразвуковой модуляцией магнитного дипольного взаимодействия между ядрами. Для пьезоэлектрических кристаллов был обнаружен новый «пьезоэлектромагнитный» механизм, основанный на взаимодействии магнитных моментов ядер с «медленной» электромагнитной волной, сопровождающей акустическую волну²⁷.

Выше отмечалось, что спин-фононные взаимодействия тесно связаны с релаксационными механизмами. Из уравнений (2) следует возможность изучения различных релаксационных процессов методом насыщения. Анализ решений уравнений (2) показал, что для J > 1 при акустическом насыщении переходов с $\Delta m = \pm 1$ и ± 2 возможно как увеличение, так и уменьшение разности заселенностей спиновых уровней. Как правило, уменьшение отношения n_m/n_0 происходит для возбуждаемых звуком переходов, а увеличение n_m/n_0 возможно для переходов, не возбуждаемых звуком. Если спин-решеточная релаксация в основном определяется квадрупольными взаимодействиями, то возможно как увеличение разности заселенностей между уровнями, так и возникновение инверсной заселенности ²¹,

Экспериментальная проверка теоретических представлений подтвердила, что акустическое насыщение различным образом влияет на отдельные разности населенностей спиновых уровней. В частности, усиление интенсивности сигнала ЯМР, а также индуцированное излучение при акустическом возбуждении переходов с $\Delta m = \pm 2$ было обнаружено на ядрах Al^{27} в Al_2O_3 ²⁸, Na^{23} в $NaNO_3$ ²⁹ и $NaClO_3$ ³⁰, что соответствует квадрупольному характеру релаксации в этих соединениях.

Принципиально новый подход к проблеме акустического насыщения был продемонстрирован в работе ³¹. В ней рассмотрено акустическое насыщение ядерной спин-системы, помещенной в постоянное поле H₀ и достаточно сильное переменное магнитное поле $2H_1 \cos \omega t$, частота которого w близка к ларморовской частоте $\omega_0 = \gamma H_0$ прецессии спинов. На спины в системе координат, вращающейся с частотой ω вокруг H₀, постоянное эффективное H_{a} действует поле С интенсивностью $\sqrt{(\omega_0 - \omega)^2 + \omega_1^2}/|\gamma|$, где $\omega_1 = \gamma H_1$. Поскольку $H_1 \ll H_0$, то влияние поля H_1 на ориентацию магнитных моментов сказывается только при ω ~ ω₀, т. е. вблизи резонанса. Таким образом, общее изменение намагниченности системы вблизи резонанса будет определяться интенсив-ностью насыщающего поля H_1 . Поле H_1 на частоте ω можно заменить эквивалентным с точки зрения насыщения спин-системы полем на частоте $\omega_1 = \gamma H_1$ для переходов с $\Delta m = \pm 1$ или $2\gamma H_1$ ($\Delta m = \pm 2$). Время спинрешеточной релаксации во вращающейся системе координат Т₁, измеряемое по спаду намагниченности вдоль эффективного поля, будет зависеть от интенсивности насыщения на частоте ω_1

$$\frac{1}{T_1^*} = \frac{1}{T_1} + \frac{1}{T_a},\tag{3}$$

тде T₁ — время спин-решеточной релаксации в отсутствие сильного переменного магнитного поля, $1/T_a \sim G \varepsilon$. Эксперимент по акустическому насыщению во вращающейся системе координат был выполнен на ядрах Na²³ в NaCl. Импульсы переменного 1/Ta, cex-1

магнитного поля С интенсивностью H_1 прикладывались на частоте ларморовской прецессии ядерных спинов в поле H_0 ($\omega/2\pi \sim$ $\sim 8 M ru$). Акустическое насыщение создавалось на частоте $\omega_1/2\pi \sim 4$ кгц. При постоянных значениях ω и ω_1 линия акустического резонанса проходилась плавным изменением величины Н_о. Константы сиин-фононной связи определялись по изменению T₄* вблизи резонанса (рис. 3).

Уже этот первый эксперимент показал, что при использовании акустического насыщения во вращающейся системе координат возможно значительное уменьшение частоты накачки (на 3—4 порядка) и существенное повышение точности





Рис. 3. Частотная зависимость скорости акустически индуцированной ядерной релаксации 31.

Одним из ярких применений метода акустического насыщения является обоснование с его помощью концепции «спиновой температуры» ³².

Посредством насыщения ядерных спинов с эквидистантным спектром (Na²³ и Cl³⁵ в NaCl) ультразвуком двойной ларморовской частоты нарушалось больцмановское распределение населенностей спиновых уровней. Если в системе отсутствует спин-спиновый обмен, то спин-система сохраняет определенное значение намагниченности. Однако благодаря спин-спиновым взаимодействиям в системе постоянно поддерживается больцмановское распределение заселенностей и намагниченность системы при акустическом возбуждении уменьшается до нуля. Именно это и наблюдалось в экспериментах Проктора, причем установление равновесия описывалось одним характеристическим временем.

Дальнейшее развитие понятия «спиновой температуры» позволило термодинамически описать ряд новых явлений, возникающих при возбуждении спиновых систем электромагнитным полем. Наиболее плодотворным в таком подходе оказалось выделение спин-спиновых взаимодействий в отдельный энергетический резервуар, обладающий собственной теплоемкостью и температурой, отличной от температур решетки и зеемановских систем ³³. Необходимость применения понятия «спин-спиновый резервуар» в магнитоакустических резонансах очевидна, поскольку акустическому воздействию, сильно меняющему заседенности спиновых уровней, можно дать в этом случае адекватное термодинамическое объяснение. Вначале была исследована роль электронных диполь-дипольных взаимодействий при акустическом насыщении кристаллов с парамагнитными ионами ³⁴, а затем понятие «диполь-дипольный резервуар» было распространено и на чисто ядерные спин-системы ³⁵.

Рассмотрим теперь результаты изучения динамики взаимодействий между спин-системами и между спин-системой и решеткой кристалла в веществах с двумя сортами ядерных спинов (чистые диэлектрики и диэлектрики с парамагнитной примесью).

В первом случае наиболее полные данные были получены Шутиловым с сотрудниками в беспримесном кристалле LiF³⁵. Ультразвуковые колебания возбуждались в нем на суммарной и разностной частотах прецессии ядерных спинов Li⁷ и F¹⁹ во внешнем магнитном поле. При этом возникали одновременные совместные переходы обоих спинов, вызванные акустической модуляцией магнитного дипольного взаимодействия между ядрами Li⁷ и F¹⁹ (акустический солид-эффект). Согласно правилам отбора, возбуждаемые переходы являются акустически «разрешенными». Воздействие ультразвука разностной частоты приводит к увеличению равновесной статической разности населенностей уровней для одного вида спинов (или эффекту динамической поляризации атомных ядер), а воздействие на суммарной частоте — к уменьшению разности населенностей и далее, к инверсии населенностей спиновых уровней. Установлено, что изменение поляризации связано с поведением «объединенного резервуара» ядерных спинспиновых взаимодействий.

Однако возможности акустического солид-эффекта не ограничиваются механизмом модуляции магнитного диполь-дипольного взаимодействия. В кристаллах с двумя сортами ядер *I* и *S*, в которых один из ядерных спинов, *S*, сильно связан с решеткой, например, квадрупольным взаимодействием, динамическая поляризация ядер может быть получена возбуждением «запрещенных» акустических переходов. Изменение равновесной населенности при насыщении запрещенных переходов было получено в монокристалле CsJ ³⁶; в нем ядра J¹²⁷ сильно связаны с решеткой ($T_1 \sim 0.01 \ cek$), а ядра Cs¹³³ аномально слабо ($T_1 \sim 500 \ cek$). На частоте возбуждения $\omega_2^- = (2\omega_J - \omega_{Cs})$ получено увеличение поляризации в 1,5 раза, а на частоте $\omega_2^+ = (2\omega_J + \omega_{Cs})$ соответственное уменьшение поляризации (рис. 4). Исследование ядерных спин-фононнных взаимодействий в кристаллах с парамагнитными примесями было осуществлено в рубине (Al₂O₃: 0,07 ат. % Cr³⁺)²⁵.

Для детектирования акустического резонанса между сверхтонкими подуровнями парамагнитного иона Cr³⁺, обусловленными взаимодействием

с ядерным моментом Cr⁵³, использовалась спин-система основных ядер Al²⁷. Линии акустического резонанса для переходов $\Delta m = \pm 1$ и ± 2 и электронных спиновых состояний | +1/2) и $|\pm 3/2\rangle$ приведены на рис. 5. Положение линий акустического резонанса $\Delta m = \pm 1$ совпадает со спектром радиочастотного двойного резонанса ³⁷ Cr^{53} — Al^{27} . Следует отметить, что, в отличие от магнитного, в акустическом резонансе разрешены переходы не только между соседними подуровнями с $\Delta m = \pm 1$, но и переходы



Рис. 4. Усиление стационарной поляризации ядер Cs¹³³ в CsI ультразвуком ³⁶.

с изменением магнитного квантового числа $\Delta m = \pm 2$. Изменение интенсивности сигнала ЯМР Al²⁷ при прохождении ультразвуком центра резонансной линии акустического ЯМР ядер Cr⁵³ составляло 70—90% при амплитуде деформации 10⁻⁶.



Рис. 5. Сигналы двойного ядерно-ядерного магнитоакустического резонанса в рубине- $(Cr^{53} \leftrightarrow \Lambda l^{27})$ ($\Delta m = \pm 1$).

При смещении частоты акустической накачки на 10 кгу ниже централинии наблюдалось усиление сигнала ЯМР ядер Al²⁷ примерно в два раза, что свидетельствует об увеличении разности населенностей уровней ядер Al²⁷, т. е. возникновении динамической поляризации ядер ³⁸. При частотеультразвука, превышающей на 10 кгу частоту резонансного перехода, наблюдалось отрицательное поглощение, характеризующее инверсиюнаселенностей ядерных спиновых уровней Al²⁷.

Кроме «запрещенных» переходов с $\Delta m = \pm 2$, в системе Al²⁷ были. обнаружены двухквантовые переходы, вызванные суммарным действием. двух фононов с частотой ω_1 . Двухквантовое акустическое возбуждение сверхтонкого перехода (1/2 \leftrightarrow 3/2) с частотой $\omega = 2\omega_1$ наблюдалось.

210 в. а. голенищев-кутузов, р. в. сабурова, н. а. шамуков

по изменению интенсивности сигнала ЯМР ядер Al²⁷. Однако, вероятность такого перехода значительно ниже одноквантового ³⁹.

Ядерные подсистемы алюминия и хрома в рубине непосредственно слабо связаны между собой, поскольку их резонансные частоты отличаются почти на порядок. Однако, взаимодействие между ними может осуществляться посредством диполь-дипольной подсистемы ионов Cr^{3+40} . Общая схема связей приведена на рис. 6. Частоты ЯМР ядер Al^{27} и Cr^{53} попадают в интервал скоростей электронной спин-решеточной релаксации.



Рис. 6. Схема энергетических связей между ядерными и электронными спин-системами в рубине.

Расчеты показывают ³⁴, что при акустическом насыщении вследствие связи между подсистемами происходит выравнивание температур ядерных спинов Al²⁷ и Cr⁵³. В результате этого происходит изменение интенсивности сигнала ЯМР ядер Al²⁷ при акустическом возбуждении спиновых переходов ядер Cr⁵³. Эти эксперименты являются первым подтверждением роли резервуара спин-спиновых взаимодействий в динамике акустического возбуждения спиновых систем.

4. ДВОЙНОЙ АКУСТИЧЕСКИЙ ЭЛЕКТРОННО-ЯДЕРНЫЙ РЕЗОНАНС

Акустический аналог двойного электронно-ядерного резонанса был теоретически рассмотрен Дейгеном и Жеру⁴¹. Они предложили возбуждать переходы между сверхтонкими уровнями локального центра акустическими колебаниями и детектировать эти переходы по их влиянию на магнитные дипольные переходы электронных спинов. Численные оценки для *F*-центров в KCl показали, что для возбуждения ядерных спиновых переходов требуется сравнительно небольшая акустическая мощность ($\sim 2 \ em/cm^2$).

Одновременное возбуждение ядерных и электронных спинов акустическими колебаниями позволяет, помимо повышения чувствительности и изучения механизмов спин-фононной связи, полнее исследовать взаимодействия между возбуждаемыми спин-системами и релаксационные процессы.

Принципиальные возможности исследования таких взаимодействий мы рассмотрим в двух различных классах кристаллов — диэлектриках, содержащих парамагнитные ионы, и магнитоупорядоченных веществах. Эти классы отличаются как механизмами связи электронных и ядерных спин-систем, так и спин-фононными взаимодействиями.

В первом случае объектом исследований был монокристалл Al₂O₃, «содержащий 0,05 ат. % ионов Cr^{3+ 42,43}. Образец помещался в постоянное магнитное поле и два переменных поля: на частотах ядерных переходов Al²⁷

ДВОЙНЫЕ МАГНИТОАКУСТИЧЕСКИЕ РЕЗОНАНСЫ

и магнитное — на частотах электронных спиновых переходов ионов Cr^{3+} . Для наблюдения акустического ЯМР ядер Al^{27} использовалась электронная спин-система Cr^{3+} . Было обнаружено изменение интенсивности сигнала ЭПР при подаче акустического насыщения на частотах, соответствующих переходам ядерных спинов с $\Delta m = \pm 1$ и $\Delta m = \pm 2$. Относительное изменение интенсивности сигнала ЭПР в центрах линий двойного резонанса составляло ~10—15% при относительной деформации ~3 ·10⁻⁷. Форма



Рис. 7. Сигналы двойного электронно-ядерного магнитоакустического резонанса Al²⁷ \leftrightarrow Cr³⁺ в рубине.

линий таких резонансов приблизительно гауссова с шириной на полуинтенсивности $\sim 2 \cdot 10^4 \ eq$. На рис. 7 приведены линии двойного акустического электронно-ядерного резонанса и значения частот для получения сигналов.

Эксперименты показали, что взаимодействие когерентных акустических фононов, генерируемых в решетку кристалла, с ядерной спин-системой происходит посредством как квадрупольных, так и дипольных взаимодействий. В последнем случае акустическая энергия передается ядерной спин-системе алюминия модуляцией магнитных диноль-дипольных или обменных взаимодействий Cr³⁺ — Cr³⁺. Участие парамагнитной спинсистемы в передаче энергии акустических колебаний ядрам носит виртуальный характер и не вызывает изменения населенностей электронной спин-системы ионов. Сравнение экспериментальных результатов с теоретическими расчетами механизмов релаксации и динамической поляризации ядер подтверждает наличие сильной связи между диполь-дипольной системой ионов Cr³⁺ и ядерной спин-системой Al²⁷^{44,45}. В процессе двойного магнитоакустического резонанса происходит следующее: при микроволновом насыщении линии ЭПР температура диполь-дипольного резервуара $Cr^{3+} - Cr^{3+}$ изменяется по отношению к ненасыщающим условиям. что в свою очередь через канал $Cr^{3+} - Cr^{3+}$ приводит к уменьшению температуры ядерной спин-системы. Звуковое возбуждение ядерных переходов уменьшает разность населенностей спиновых уровней и, таким образом, приводит к нагреванию диполь-дипольной системы. В конечном итоге, наличие связи между электронной зеемановской системой ионов Cr³⁺ и системой диполь-дипольных взаимодействий тех же ионов приводит к увеличению температуры электронной спин-системы, что наблюдается как уменьшение интенсивности сигнала ЭПР. С помощью описанной выше методики был также наблюден двойной акустический электронно-ядерный резонанс Cr⁵³ — Cr³⁺ в рубине. Частоты резонансных пиков для ядер Cr⁵³, полученные при электронно-ядерном резонансе $Cr^{53} - Cr^{3+}$, хорошо совпадают с аналогичными частотами переходов Cr^{53} , определенными из ядерно-ядерного акустического резонанса $Cr^{53} - Al^{27-34}$.

Следует отметить и «обращенный» магнитоакустический электронноядерный резонанс, изучавшийся в монокристалле $CaF_2: U^{4+46}$. Поскольку сигнал ЭПР от ионов U^{4+} обладает малой интенсивностью, то для детектирования двойного резонанса $F^{19} - U^{4+}$ использовался акустический ЭПР на ионах U^{4+} , имеющий значительно бо́льшую интенсивность. Величина гиперзвукового парамагнитного пеглощения при постоянном H_0 измерялась в зависимости от частоты насыщающего радиочастотного поля.

Было обнаружено увеличение или уменьшение амплитуды гиперзвукового эхо-сигнала, прошедшего многократно через образец, когда частота переменного магнитного поля соответствовала частотам переходов ядерных спинов F¹⁹. Наибольшие изменения в акустическом поглощении наблюдались в том случае, когда гиперзвуковые импульсы частично насыщали электронные переходы. Эти факты также подтверждают предположение об участии электронных диполь-дипольных взаимодействий в обмене энергией между ядерной и электронной спин-системами. Уширение линии двойного акустического резонанса F¹⁹ — U⁴⁺ обусловлено искажением: локальной симметрии внутрикристаллического поля акустическими колебаниями. Исследование акустического ядерного резонанса в магнитоупорядоченных кристаллах связано с рядом особенностей. К ним можно отнести наличие больших внутренних полей на ядрах, создающих сдвиг резонансных частот; нелинейное взаимодействие электронных и ядерных подсистем между собой и решеткой кристалла 47-51. Косвенные взаимодействия ядерных спинов посредством спиновых волн в электронной системе становятся весьма существенными в кубических антиферромагнетиках, которые к настоящему времени наиболее полно изучены с помощью акустического резонанса ^{52,53}. В упомянутых веществах слабое поле анизотропии и большое сверхтонкое поле H_N вызывают сдвиг ядерных и электронных мод в близкий частотный интервал. Резонансные частоты для зависящей от поля H_0 (+) и не зависящей от поля (-) электронных (ω_{e+}) и ядерных (ω_{n+}) мод имеют вид ⁵⁴

$$\omega_{e\pm}^{2} = \omega_{e_{1,2}}^{2} + \omega_{T}^{2}, \quad \omega_{n\pm}^{2} = \omega_{N}^{2} \left(1 - \frac{\omega_{T}^{2}}{\omega_{e\pm}^{2}} \right), \tag{4}$$

где ω_{е1,2} — частоты антиферромагнитного резонанса без учета взаимодействий с ядерными спинами, ω_N — сверхтонкая частота.

Член ω_T , обусловливающий связь невозмущенных электронной и ядерной мод, обратно пропорционален температуре ядерной спинсистемы. Если при высоких температурах этот член мал, то при низких температурах ($T \sim 1-10$ °K) ω_T становится порядка ω_e и возникает динамическая связь обеих подсистем. В результате появляются значительные низкотемпературные сдвиги электронных и ядерных частот. Это явление используется для наблюдения ЯМР с помощью двойногоядерно-антиферромагнитного резонанса ⁵⁵. Насыщение ядерной спиновой системы внешним полем повышает ее температуру, что приводит к уменьшению низкотемпературного сдвига электронной (+) моды. Изменение частоты ω_{e+} моды обычно наблюдается по сдвигу резонансногомагнитного поля H_0 при постоянной частоте антиферромагнитного резонанса.

Теоретическое рассмотрение процессов резонансного поглощения акустической энергии ядрами в магнитоупорядоченных веществах показало, что подобный процесс может осуществляться посредством двух механизмов ⁵¹. В первом из них периодические колебания решетки посредством магнитоупругой связи вызывают колебания электронных спинов и тем самым модулируют сверхтонкое поле на ядрах (магнитострикционный механизм), причем участие электронной системы не изменяет ее энергии. Во втором случае колебания решетки непосредственно модулируют сверхтонкие или обменные электронно-ядерные взаимодействия. Явление динамического сдвига электронных и ядерных частот было использовано для изучения двойных магнитоакустических резонансов в монокристаллах RbMnF₃ и KMnF₃ ⁵⁶. Насыщение ядерной спин-системы ультразвуком

на частотах 500-670 Мгц с мощностью ~10⁻²-10⁻³ вт приводило к изменению резонансного поля $\Delta H_{0 \max} \sim 300$ гс (+) моды и изменению интенсивности (--) моды антиферромагнитного ренаблюдавшегося на зонанса. частоте 9,5 ·10⁹ ги. Такой широкий частотный интервал накачки ядерных спинов, вызывающий смещение частоты антиферрорезонанса, магнитного полтверждает предположение 55 0 «перепутывании» электронных и ядерных спиновых ветвей при низких температурах. Соответствует этому и связь между частотой накачки и эффективной ядерной спиновой температурой T_n (рис. 8).

Другим нелинейным эффектом является порог мощности акустической накачки для поле-



Рис. 8. Зависимость частоты акустической накачки v (в *Мгц*) от ядерной спиновой температуры в RbMnF₈.

 теоретическая кривая, 2 — экспериментальная кривая при постоянной мощности звука.

вого сдвига антиферромагнитного резонанса, ранее наблюдавшийся при электромагнитной накачке. По-видимому, вначале акустическое насыщение ядерных спинов возникает в местах, где существуют сильные градиенты внутреннего поля, которые модулируются акустическими колебаниями.

Известно, что ЯМР в антиферромагнетиках наблюдается только на одной из ветвей спектра (ω_{n+}), поскольку для другой ветви отсутствует усиление радиочастотного поля за счет модуляции сверхтонких полей.

В отличие от радиочастотного насыщения, акустическое воздействие позволяет изучать обе ветви колебаний ядерных спинов, поскольку коэффициенты усиления акустических колебаний для обеих ядерных мод одного порядка.

Эквивалентные коэффициенты поглощения ультразвука ядерными спинами (α_n), определенные посредством получения равной величины смещения поля H_0 для антиферромагнитного резонанса при акустической и электромагнитной накачке, имеют значения $\sim 10^2 \ \partial \delta / cm$. Расчеты показывают, что рекордные значения α_n обусловлены сочетанием весьма больших резонансных частот ЯМР и малых полей анизотропии в кубических антиферромагнетиках. Эти значения на несколько порядков превышают величины α_n как для диэлектриков, так и для других магнитоупорядоченных веществ.

214 В. А. ГОЛЕНИЩЕВ-КУТУЗОВ, Р. В. САБУРОВА, Н. А. ШАМУКОВ

5. АКУСТИЧЕСКАЯ ДИНАМИЧЕСКАЯ ПОЛЯРИЗАЦИЯ АТОМНЫХ ЯДЕР

Явление динамической поляризации атомных ядер нашло применение в ядерной физике для создания ориентированных ядерных мишеней и достижения сверхнизких температур. Получение устойчивой динамической поляризации при помощи акустического насыщения в твердых телах, особенно в больших объемах металлов и полупроводников, могло бы расширить сферу применения этого эффекта. В последние годы были предложены различные способы создания акустической динамической поляризации. Выше 35,36 уже упоминалось об увеличении поляризации при возбуждении ультразвуком двойных ядерно-ядерных переходов. Другой метод поляризации был осуществлен при адиабатически быстром прохо-ждении линии ЯМР ультразвуком ⁵⁷. При прохождении частоты ультразвука через резонанс спинов в данном магнитном поле создавалась инверсная заселенность спиновых уровней. Хотя эти методы и не дают высокой степени поляризаций, но являются весьма перспективными для исследования внутренних взаимодействий. Значительно большую поляризацию можно получить посредством акустического насыщения электронной спин-системы, используя электронно-ядерные взаимодействия.

Для диэлектрических кристаллов, содержащих парамагнитные ионы, акустическая накачка на частотах $\omega_e \pm \omega_n$ создает максимальную поляризацию $p \sim \omega_e/\omega_n$, где ω_e и ω_n — соответственно электронная и ядерная резонансные частоты. Как показано в работе ⁵⁸, для системы ядер со спином $J = {}^{3}\!/_{2}$ в аксиально-симметричном кристалле, содержащем ионы с эффективным спином S = 1/2, поляризации для дипольного (D) и квадрупольного (Q) механизмов связи относятся так

$$p_D: p_{Q_1}: p_{Q_2} = 2\left[3 + 2\operatorname{sech}\left(\frac{\hbar\omega_e}{kT}\right)\right]: 10: 5\left[1 + \operatorname{sech}\left(\frac{\hbar\omega_e}{kT}\right)\right].$$
(5)

Для $\omega_e \sim 10$ Гец, $\omega_n \sim 10$ Мец и T = 0.5 °К $p_D : p_{Q_1} : p_{Q_2} = 0.67 : 1 : 0.59$ при $p_{Q_1} = 633$.

Рассмотрение механизмов взаимодействия ультразвука с ядрами в металлах ⁵⁹ показало, что передача энергии вынужденных колебаний решетки в спин-системе ядер происходит через сверхтонкое взаимодействие ядер с электронами проводимости. В этом случае поглощение звука с частотой ω_a приводит к поляризации ядер или акустическому аналогуэффекта Оверхаузера при условии, что

$$\omega_a \gg \left(4kT + \frac{3}{2}\gamma H_0\right)$$
.

Акустическая динамическая поляризация ядер Si²⁹ в сильно легированном монокристалле кремния исследовалась Хауссером и Швейцером ⁶⁰. При помощи гиперзвука частоты $9 \cdot 10^9$ гу было получено насыщение электронных спиновых уровней фосфора (T = 1,6 °K). В этом эксперименте гиперзвук возбуждался на одном торце образца, а вокруг остальной его части располагалась катушка контура ЯМР для обнаружения изменения заселенностей ядерных спиновых уровней. Эксперименты по акустической поляризации в образце, содержащем $2 \cdot 10^{19}$ атомов фосфора, показали, что интенсивность сигнала ЯМР Si²⁹ уменьшается на 1/3 при возбуждении гиперзвука мощностью ~10 мкет. По мнению авторов, основная причина малости эффекта заключается в недостаточной мощности насыщающего акустического поля.

Более высокая степень акустической динамической поляризации ядер была получена на ядрах Al²⁷ в рубине ⁶¹. Гиперзвуковые импульсы с частотой 10¹⁰ ги вводились вдоль тригональной оси образца с помощью стержня из ниобата лития с металлизированными поверхностями. Таким путем

ДВОЙНЫЕ МАГНИТОАКУСТИЧЕСКИЕ РЕЗОНАНСЫ

осуществлялась экранировка образца от воздействия возбуждающих пьезопреобразователь мощных электромагнитных импульсов. Гиперзвуком насыщались переходы между спиновыми уровнями ($-1/2 \leftrightarrow 3/2$) ионов Cr^{3+} (концентрация 0,01%). При акустическом насыщении было отмечено десятикратное изменение интенсивности сигнала ЯМР Al^{27} при T = 4,2°К. При плавной перестройке H_0 вначале ($\gamma H_0 < \omega_p$) наблюдалось усиление сигнала ЯМР. При прохождении центра линии ЭПР-



Рис. 9. Динамическая поляризация ядер Al²⁷ в рубине при частотной расстройке акустического насыщения от центра линым ЭПР Сг³⁺.

наблюдалось уменьшение интенсивности и, далее, инверсия заселенностей спиновых уровней Al²⁷ (рис. 9). Расстояние между максимумами изменения интенсивности линий ЯМР равно 50 э. Время восстановления первоначальной интенсивности после выключения накачки составляет 120 сек.

Эти результаты хорошо согласуются с теоретическими представлениями и подтверждают возможности осуществления акустической поляризации ядер.

6. ДВОЙНОЙ АКУСТИЧЕСКИЙ ЭЛЕКТРОН-ЭЛЕКТРОННЫЙ РЕЗОНАНС

Двойной электронный резонанс использовался в ряде работ ^{12,62-67} как для изучения механизмов спин-фононных взаимодействий в различных кристаллах, так и для исследования особенностей динамики спиновых систем под действием акустического возбуждения. Этим методом наблюдался акустический резонанс от ионов Mn^{2+} и радиационных центров в кварце ¹², ионов Mn^{2+} и Fe³⁺ в корунде ⁶⁴, ионов Fe²⁺ и Fe³⁺ в MgO ⁶⁵. В последнем случае с помощью двойного резонанса удалось разделить сигналы от ионов Fe³⁺ и Fe²⁺, хотя концентрация последних на два порядка меньше по сравнению с ионами Fe³⁺.

Теоретические оценки и экспериментальные результаты показывают, что в диэлектрических кристаллах, содержащих парамагнитные ионые промежуточных групп, взаимодействие акустических волн с электронной спин-системой происходит посредством механизма Ван-Флека. В этомслучае периодические колебания решетки модулируют внутрикристаллическое поле в местах расположения парамагнитных ионов. Орбитальное движение электронов, чувствительное к флуктуациям кристаллическогополя, в свою очередь через спин-орбитальную связь изменяет состояния электронных спинов.

Однако при большой концентрации парамагнитных ионов эффективным может стать механизм Валлера. Тогда спин-фононная связь обусловлена модуляцией спин-спиновых взаимодействий колебаниями решетки.

С точки зрения изучения особенностей спин-фононных взаимодействий заслуживают внимания работы по возбуждению перехода одного иона «с одновременным поглощением нескольких фононов. Условие резонанса для *n*-квантового процесса имеет вид $nhv = \gamma H_0$. Такие резонансные двухфононные переходы были обнаружены в начале на ионах Fe^{2+} в MgO ⁶⁶, а многофононные (n = 2, 3, 4) процессы наблюдались на переходах ($1 \leftrightarrow -1$) ионов U⁴⁺ в CaF₂ ⁶⁷. Из угловой зависимости резонансных частот и интенсивности поглощения следует, что акустическое резонансное поглощение действительно обусловлено *n* фононами с частотой *v*, а не одним фононом частоты *hv*. Однако нелинейное возрастание акустического поглощения при значительном увеличении мощности гиперзвука, по-видимому. связано с возникновением ангармонических колебаний с частотами, кратными *hv*.

Акустическое возбуждение различных спиновых переходов в $Al_2O_3: Cr^{3+62}$, создающее селективное усиление или ослабление интенсивностей линий ЭПР, позволило получить дополнительные сведения о релаксационных процессах, в частности, о вкладе в них фононов различной поляризации.

Исследование механизмов спин-решеточной и спин-спиновой релаксаций также можно проводить при акустической модуляции спектров ЭПР в интервале скоростей этих релаксационных процессов ($w_a \sim T_1^{-1}, T_2^{-1}$, где T_2 — время спин-спиновой релаксации)⁶⁸.

Остановимся несколько подробнее на оптическом детектировании акустического ЭПР в молекулярных кристаллах. Для органических молекул спин-фононные взаимодействия в возбужденных парамагнитных состояниях значительно слабее, чем в диэлектриках, содержащих парамагнитные ионы и поэтому наблюдать акустический ЭПР прямым методом вряд ли возможно. Однако высокая чувствительность оптического детектирования позволила наблюдать поглощение звука в парамагнитном триплетном состоянии тетрахлорбензола в нулевом магнитном поле ⁶⁹. Оптически детектируемый акустический ЭПР наблюдался по изменению интенсивности фосфоресценции на длине волны 3782 Å при свиппировании частоты гиперзвука в области 2*E*-перехода (1,7 ·10⁹ гц). Изменение интенсивности на 30% соответствовало акустической мощности в образце ~100 мкст. Исследования акустического ЭПР в молекулярных кристаллах позволяют изучать анизотропию спин-решеточной связи и вклад в нее продольно- и поперечно-поляризованных фононов.

7. АКУСТИЧЕСКИЕ МАЗЕРЫ И КВАНТОВЫЕ ДЕТЕКТОРЫ ФОНОНОВ

Развитие исследований по двойным магнитоакустическим резонансам логически привело к изучению возможностей усиления и генерации монохроматических когерентных фононов спиновыми системами и созданию акустических мазеров. В первых теоретических работах Копвиллема и Корепанова ⁷⁰, Таунса ⁷¹ и Киттеля ⁷² рассматривалась общая квантовая схема, в какой-то мере аналогичная уже используемой для усиления и генерации фотонов ⁷³. Создание инверсной населенности спиновых уровней дополнительным резонансным полем, например, электромагнитной природы, при достаточно сильной спин-фононной связи должно приводить к усилению как тепловых фононов, так и внешне генерируемых монохроматических акустических волн с частотами, соответствующими определенному спиновому переходу. Генерация фононов наступает при самовозбуждении системы благодаря использованию высокодобротного акустического резонатора, роль которого, как и в твердотельных лазерах, играет -сам образец.

Усиление акустических импульсов впервые было получено Таккером ⁷⁴ на электронной спин-системе ионов Сг³⁺ в рубине. Методика эксперимента во многом сходна с наблюдением двойных акустических электронэлектронных резонансов. Для создания инверсии заселенностей спиновых уровней один конец цилиндрического образца помещался в резонатор СВЧ. На втором конце образца с помощью кварцевого преобразователя возбуждались акустические импульсы с частотой спинового перехода. При мощности электромагнитной накачки в 40 мет на частоте 9,3.10° гц

и T = 4,2 °K было получено уменьшение в затухании гиперзвуковых волн на 12% на 1 см длины образца по сравнению с выключенной электромагнитной накачкой (рис. 10).

Этот первый эксперимент указал на реальную возможность использования принципов вынужденного излучения и поглощения при возбуждении спин-систем акустическими полями.

Генерация фононов происходит в том случае, когда инверсное усиление значительно превышает общие потери на затухание гиперзвука в образце и связывающем слое, и на рассеяние в окружающую среду.



Рис. 10. Увеличение амплитуды акустических эхо-импульсов при электромагнитной накачке (1) по сравнению с обычным затуханием (2) ⁷⁴.

Действительно, несколько позднее, Таккеру ⁷⁵ с помощью двухрезонаторного устройства удалось получить генерацию фононов. Расчеты показали, что для компенсации потерь в системе и достижения порога генерации необходим коэффициент усиления $0,11 \, cm^{-1}$. Общая ширина полосы генерации составляла $11 \, msu$, что значительно меньше ширины линии перехода (~50 Msu). Мощность акустических колебаний в рубиновом стержне, измеренная по электромагнитному излучению от кварцевого преобразователя, не превышает $10^{-7} \, em$.

Подобный же метод был использован в работе ⁷⁶ для получения квантового усиления на ионах Ni²⁺ в Al₂O₃. Эксперимент выполнялся на плоскопараллельном образце, содержащем $5 \cdot 10^{-4}$ % ионов Ni²⁺. Акустические импульсы генерировались пленочным пьезопреобразователем из CdS на частоте 9,4 · 10⁹ гу, при электромагнитном насыщении перехода с частотой $v = 5,3 \cdot 10^{10}$ гу. Спин-фононные взаимодействия для ионов Ni²⁺ в несколько раз сильнее, чем для Fe²⁺, поэтому наблюдалось усиление 0,013 $\partial 6/c_M$ при T = 2,2 °K. Это усиление превышает потери на затухание гиперзвука в образце, однако получить генерацию акустических колебаний не удалось, что, по мнению авторов, связано с рассеянием гиперзвука в образце за счет непараллельности торцов, несовершенства кристаллической структуры и малой концентрации ионов.

Шайрен ⁷⁷ для создания инверсной заселенности применил метод адиабатически быстрого прохождения магнитным полем через резонансные спиновые переходы с $\Delta m = \pm 1$ ионов Ni²⁺ и Fe²⁺ в MgO. После установления инверсии уровней (1 $\leftrightarrow -1$) возбуждались двойные фотон-фононные переходы одновременным воздействием электромагнитным и акустическим импульсами ($v_{2M} + v_q = v_{1 \leftrightarrow -1}$). При T = 1.6 °К наблюдалось акустическое усиление 10 $\partial 6/cm$ для ионов Ni²⁺ и 24 $\partial 6/cm$ для ионов Fe²⁺. Величины эти несколько ниже теоретически рассчитанного коэффициента усиления, что объясняется неполной инверсией заселенностей и ее разрушением благодаря коротким временам спин-решеточной релаксации.

Значительные успехи в генерации когерентных фононов были достигнуты Ганапольским и Маковецким ^{78,79} с помощью более совершенного метода возбуждения акустических колебаний и создания гиперзвукового резонатора с малыми потерями (добротность резонатора ~5.10⁵) (рис. 11).

2 УФН, т. 119, вып. 2

Инверсия заселенностей спиновых уровней ионов Cr³⁺ в рубине создавалась электромагнитной накачкой на частоте 2,3·10¹⁰ гц. При этом возникало когерентное спонтанное излучение фононов с интенсивностью





 $10^{-6} \ em/cm^2$ на частоте $9,1.10^9 \ eu$ (T== 1,7 °К). Частотный спектр акустических. колебаний состоит из отдельных узких. линий с монохроматичностью излучения в каждой $(\Delta v/v)$ меньше 2.10⁻⁶. По мнению авторов, совокупность линий излучения соответствует одновременной генерации на нескольких соседних акустических модах гиперзвукового рубиновогорезонатора. Из вида спектра прелиолагается, что ширина уровня элементарного спинового возбуждения $\Delta v \sim 3 \cdot 10^5 \ zy$, что на 2—3 порядка меньше ширины неоднородной резонансной линии ЭПР ионов Cr³⁺ в рубине. Время жизни когерентных фононов, определенное из величины порогового усиления ($\alpha_n \sim 0.55 \ \partial \delta / c_M$), составляет 7.10-6 сек, что совпадает с аналогичными значениями, полученными по рубинового резонатора и по затуханию

ширине резонансной кривой рубинового резонатора и п эхо-импульсов в резонаторе в отсуствие магнитного поля.

Из изложенных результатов следует, что для акустического мазера целесообразно использовать образцы с достаточно малым основным акустическим затуханием, содержащие парамагнитные ионы с большим спин-фононным взаимодействием. Вещества, которые могут быть использованы в акустическом мазере, приведены в таблице ⁸⁰. Константы спинфононной связи G_{ij} даны в cm^{-1} /ед. деформации.

Вещество	Ион	G11	G44	$\sqrt{G_{16}^2 + [(G_{11} + G_{12})^2/4]}$
$\begin{array}{c} MgO\\ MgO\\ MgO\\ Al_{2}O_{3}\\ Al_{2}O_{3}\\ Al_{2}O_{3}\\ Al_{2}O_{3}\\ Al_{2}O_{3}\\ KMnF_{3}\\ KMnF_{3}\\ CaF_{2} \end{array}$	$\begin{array}{c} {\rm Ni}^{2+} \\ {\rm Fe}^{2+} \\ {\rm V}^{3+} > \\ {\rm Fe}^{2+} > \\ {\rm Mn}^{3+} \geqslant \\ {\rm Cr}^{4+} \\ {\rm Fe}^{2+} \\ {\rm V}^{3+} \\ {\rm Ni}^{2+} \\ {\rm Fe}^{2+} \\ {\rm U}^{4+} \end{array}$	57 650 1000 90 500 9055581340170	50 380 39 1000 	

По-видимому, частотный предел действия акустических мазеровможет быть значительно расширен благодаря возбуждению спиновых переходов лазерной накачкой в веществах, содержащих оптически активные центры. Детальный расчет⁸¹, выполненный для лазерного возбуждения в MgO : Cr³⁺, показал реальную возможность генерации фононов с частотой до $3 \cdot 10^{12}$ гу, а в кристаллах CaF₂ : Sm²⁺ — до $8 \cdot 10^{12}$ гу.

Вскоре после осуществления первых экспериментов по двойным магнитоакустическим резонансам появились предложения по их использованию для детектирования акустических фононов с малой плотностью.

Метод индикации акустических колебаний в импульсном и непрерывном режимах с помощью двухквантовых переходов в трехуровневой системе был предложен в работе 82. Схема с одновременным поглощением фотона и фонона позволяет использовать ε3 множество комбинаций частот фононов ω_α и фотонов ω_m при выполнении условия: $(\hat{\omega_m} + \omega_a) = \tilde{\omega}$ (рис. 12), где $\tilde{\omega}$ – час-тота двухквантового перехода. В работе подчеркивается, что двухквантовая индиравной кация при чувствительности

с методом пьезоэлектрического преобразования не требует фазовой когерентности сигнала, для ионов Fe²⁺ в MgO гиперзвуковые колебания обнаруживались в диапазоне 300 Мгц при фиксированной частоте электромагнитного поля.

Значительное повышение чувствительности можно достигнуть в подобной трехуровневой схеме при использовании сверхнизких температур, когда практически все спины будут находиться на

нижнем уровне (1) 83. Заселение двух верхних уровней (2, 3) будет происходить при одновременном акустическом и электромагнитном возбуждении переходов (1 ↔ 2) и (2 ↔ 3). Авторы работы ⁸³ считают, что можно обнаружить в образце поток в 1 фонон/сек при температуре ~0.01 °К.

Акустическое насыщение линий ЭПР (ЯМР), приводящее к изменению заселенностей спиновых уровней, может быть использовано при известных константах спин-фононных взаимодействий для измерения амплитуды деформации или акустической мощности. При этом используется пропорциональность фактора насыщения А/А о произведению Giie;. Минимальное значение обнаруживаемой деформации зависит от отношения $\Delta A/A_{\rm m}$, где $\Delta A = A_0 - A$, $A_{\rm m}$ — совокупность шумов измерительного устройства, отнесенная ко входу. Для ранее исследованных ядер (например \ln^{115} в $\ln Sb$)⁸⁴ ε_{min} составляет 10^{-6} при T=4,2 °K в диапазоне частот 1-20 Мги.

Для повышения чувствительности измерения методом акустического насыщения было предложено использовать динамическую поляризацию ядер, с помощью которой можно увеличить разность населенностей спиновых уровней в ω_l / ω_n раз и, соответственно, во столько же раз увеличить квантового генератора. Эксперимент по измерению чувствительность амплитуд переменных деформаций был выполнен на монокристалле рубина (Al₂O₃: 0,46% Cr³⁺) ⁸⁵. Электромагнитным полем насыщался переход ($-3/2 \leftrightarrow -1/2$) ионов Cr³⁺ на частоте 3,6 · 10¹⁰ гц. Изменение разности населенностей спиновых уровней ядер Al²⁷ регистрировалось по изменению величины сигнала ЯМР. При мощности электромагнитной накачки ~ 5 мвт и T=4,2 °К удалось получить изменение разности населенностей уровней ядер Al²⁷ на два порядка, большее по сравнению с равновесной. Затем в образце возбуждались акустические колебания с частотой переходов ядерных спинов Al²⁷. Диапазон частот 3-20 Мгц перекрывался: изменением величины и направления постоянного магнитного поля H_{0} , относительно кристаллических осей. При $\Delta A/A_{\rm m} \sim 5$ измеряемые ампли-туды деформации составляют 7.10⁻⁹, что на два порядка меньше, чем измеряемая єті в том же образце, но в отсутствие динамической цоляризации ядер. Поскольку степень поляризации пропорциональна hv/kT,



Рис. 12. Схема двухквантовых переходов.

то представляется целесообразным для увеличения динамической поляризации понижение температуры и повышение частоты накачки. При $T \sim 10^{-1} - 10^{-2}$ °K и $v \sim 10^{11} - 12^{12}$ ги этот метод может быть использован для создания сверхчувствительных датчиков акустических деформаций. Детектирование акустических воли в микроволновом пиапазоне

с помощью спин-фононного спектрометра было осуществлено Андерсоном



Рис. 13. Акустический спин-детектор и сигналы акустических колебаний, детектируемые по оптическому дихроизму в CaF₂: Tm^{2+ 86}.

и Сабринским ⁸⁶. В качестве квантового детектора использовались ионы Tm^{2+} в СаF₂. Изменение заселенностей спиновых уровней на частотах 10 и 24 *Гец* детектировалось по циркулярному дихроизму кристалла (рис. 13). Поскольку интенсивность циркулярной поляризации *P* парамагнетика зависит от спиновых заселенностей, то в эксперименте измеряется зависимость *P* от числа спинов на данном уровне N_i . Например, для двухуровневой системы $P/P_0 = (N_1 - N_2)/(N_1 + N_2)$. При температуре 1,4 °К минимально измеренная по дихроизму мощность монохроматической акустической волны составляет 10^{-11} em.

8. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Представленные в настоящем обзоре данные показывают широкие возможности детального исследования особенностей внутренних взаимодействий в различных классах кристаллов методами двойных акустомагнитных резонансов. Дальнейшее использование и развитие этого метода, несомненно, расширит существующие представления о структуре и динавнутрикристаллических полей, релаксационных мике процессах и т. д. Одним из перспективных направлений этого метода следует считать фононную индукцию и эхо⁸⁷, о чем свидетельствуют недавно полученные первые экспериментальные результаты ⁸⁸. Несомненный интерес представляет поиск веществ с рекордно большими спин-фононными взаимодействиями, которые могут быть использованы в качестве рабочих тел акустических мазеров, а также разработка новых методов генерации и усиления когерентных акустических колебаний. По-видимому, здесь может найти применение эффект генерации звука спиновыми системами в режиме сверхизлучения 89,90.

ФТИ Казанского филиала АН СССР

ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

- 1. С. А. Альтшулер, Б. М. Козырев, Электронный парамагнитный резонанс, М., «Наука», 1972.
- С. А. Альтшулер, ДАН СССР 85, 1235 (1952).
 А. Kastler, Experientia 8, 1 (1952).
- 4. С. А. Альтшулер, Б. И. Кочелаев, А. М. Леушин, УФН 75, 459 (1961). 5. В. А. Шутилов, Акуст. ж. 8, 1 (1962).
- 6. Д. Болеф, вкн. Физическая акустика, под ред. У. Мэзона, т. IVA, М., «Мир», 1969, гл. III.
- 7. Е. Таккер, ibid., гл. II. 8. А. Р. Кессель, Ядерный акустический резонанс, М., «Наука», 1969.
- 8. А. Р. К. ССССТБ, Адерный акустический резонанс, М., «нау 9. R. K. Sundfors, Phys. Rev. 177, 1221; 185, 468 (1969).
 10. J. C. Miller, W. D. Smith et al., ibid. B3, 1547 (1971).
 11. A. A. Manuel, J. Buttet, Sol. State Comm. 14, 749 (1974).
 12. E. H. Jacobsenetal., Phys. Rev. Lett. 3, 81 (1959).
 13. К. H. Баранский, ДАН СССР 114, 517 (1957).
 14. A. Kastler, L. Phys. et Badium 15, 300 (1954).

- п. п. Баранским, для СССР 114, 517 (1957).
 А. Каstler, J. Phys. et Radium 15, 300 (1954).
 Ч. Пул, Техника ЭПР-спектроскопии, М., «Мир», 1970.
 G. A. Alers, P. A. Fleury, J. Acoust. Soc. Am. 36, 1297 (1964).
 Г. Михайлов, В. А. Шутилов, Акуст. ж. 10, 98 (1964).
 Е. F. Тауlor, N. Blombergen, Phys. Rev. 113, 431 (1959).
 Х. Г. Богданова, Ю. В. Владимир пев, В. А. Голенищев-Ку-тхаов Н. А. Шамуков ШТЭ М. 5. 466 (4060).

- Х. Г. Богданова, Ю. В. Владимирцев, В. А. Голенищев-Ку-тузов, Н. А. Шамуков, ПТЭ, № 5, 166 (1969).
 Ю. В. Владимирцев, В. А. Голенищев-Кутузов, У. Х. Коп-виллем, Н. А. Шамуков, Акуст. ж. 15, 345 (1969).
 Р. В. Сабурова, М. И. Пирожков, Деп. ВИНИТИ № 1038-69 (1969).
 В. Г. Бадалян, В. Ф. Казанцев, Способ сдвига линий ЭПР образцов, Авторское свидетельство № 270015 (1968); в кн. VII Всесоюзная акустическая конференция. Тезисы, Л., ЛКИ, 1971, стр. 202.
 М. А. Collins et al., J. Phys. C4, L116 (1971); J. Magnet. Res. 6, 376 (4972)
- (1972).
- 24. Н. А. Шамуков, В. А. Голенищев Кутузов, ПТЭ, № 3, 186 (1970).
 25. Ю. В. Владимирцев, В. А. Голенищев Кутузов, У. Х. Коп-виллем, Н. А. Шамуков, в кн. XV Всесоюзное совещание по физике низвиллем, Н. А. Шамуков, вкн. XV Всесоюзное совещание по физике низ-ких температур. Тезисы докладов, Тбилиси, ИФ АН Груз. ССР, 1968, стр. 121; Письма ЖЭТФ 9, 85 (1969).
 26. М. Ј. Вискlеу, С. В. Наггіs, Ј. Сћет. Рћуз. 56, 137 (1972).
 27. В. А. Шутилов, Г. Л. Антокольский, ФТТ 11, 1601 (1969).
 28. Р. В. Сабурова, В. А. Голенищев-Кутузов и др.,, ibid., стр. 2530.
 29. В. М. Сарнацкий, В. А. Шутилов, ibid. 14, 761 (1972).
 30. Т. Капаshіго, Т. Оһпо et al., Phys. Soc. Japan 32, 579 (1972).
 31. М. Напаbusa, Т. Yamaguchi, ibid. 26, 901 (1969).
 32. А. Аbгадат, W. G. Proctor, Phys. Rev. 109, 1444 (1958).
 33. Б. Н. Провоторов, ЖЭТФ 41, 1582 (1961).
 34. В. А. Голенищев-Кутузов, Р. В. Сабурова, Н. А. Шамуков, ФТТ 12, 3100 (1970).

- ΦTT 12, 3100 (1970).
- 35. Г. Л. Антокольский, Л. Н. Ферштат, В. А. Шутилов, Письма ЖЭТФ 13, 404 (1971).
- 36. Л. Н. Ферштат, В. А. Шутилов, Г. Л. Антокольский, ФТТ 15, 1973 (1973); Письма ЖЭТФ 16, 525 (1972).
- J. Lambe, N. Laurance et al., Phys. Rev. 122, 1161 (1961).
 V. A. Golenishchev-Kutuzov, U. H. Kopvillem, in: Magnetic Résonances and Related Phenomena (Proc. of 16th Congress AMPERE), Budapest,
- 1970, p. 980.
 39. V. A. Golenishchev-Kutuzov, N. A. Shamukov, S. A. Miga-chev, in: Proc. of 8th Intern. Congress of Acoustic, Budapest, 1971, p. 277.
- 40. В. А. Ацаркин, М. И. Родак, УФН 107, 3 (1972).

- 44. Г. Р. Хуцишвили, УФН 96, 441 (1968).
 45. Л. Л. Буишвили, М. Д. Звиададзе, ФТТ 10, 2397 (1968).
 46. С. М. Воиdел, Н. С. Меуег, Р. Е. Мс Donald, Phys. Rev. Lett. 22, 224 (1969); Rev. Sci. Instr. 40, 730 (1969).

- 47. A. J. Heeger, A. M. Portis et a., Phys. Rev. Lett. 7, 308 (1961).
- 48. А. С. Боровик-Романов, Н. М. Крейнес, П. А. Прозорова, жэтф 45, 64 (1963).
- 49. Р. С. De Gennes, Р. А. Pincus et al., Phys. Rev. 129, 1105 (1963).
 50. А. С. Боровик Романов, В. А. Тулин, Письма ЖЭТФ 1, 18 (1965).
 51. Е. А. Туров, М. П. Петров, Ядерный магнитный резонанс в ферро- и анти-ферромагнетиках, М., «Наука», 1969.
- ферромагнетиках, М., «Наука», 1969. 52. Ј. В. Меггу, D. J. Bolef, Phys. Rev. **B4**, 1572 (1971). 53. Х. Г. Богданова, В. А. Голенищев-Кутузов и др., ФТТ **17**, 1198 (1975). 54. Е. А. Туров, В. Г. Кулеев, ЖЭТФ 49, 248 (1965). 55. G. L. Witt, А. М. Рогtis, Phys. Rev. 136, А1316 (1964). 56. Х. Г. Богданова, В. А. Голенищев-Кутузов, Р. В. Сабуро-

- в а, в кн. Труды Международной конференции по магнетизму, т. 1, М., «Наука», 1974.

Х. Г. Богданова, В. А. Голенищев-Кутузов, Ф. С. Вагапо-ва, А. А. Монахов, Р. В. Сабурова, ЖЭТФ 68, 1834 (1975). 57. В. Ф. Тарасов, В. А. Голенищев-Кутузов, Письма ЖЭТФ 21,

- 205 (1975).
- 58. M. D. Breitbart, W. A. Barker, J. Acoust. Soc. Am. 41, 557 (1967).
- 59. Б. М. Хабибуллин, ФТТ 9, 1020 (1967).
- 60. K. H. Hausser, D. Schwettzer, in: Proc. of 15 Colloque AMPERE, Gre-
- 60. К. Н. Наиззег, D. Schwettzer, m. 1100. от но соледение по noble, 1968, р. 153.
 61. С. А. Мигачев, Н. А. Шамуков, вкн. VIII Всесоюзное совещание по квантовой акустике. Тезисы докладов, Казань, ЦНТИ, 1974, стр. 84.
 62. М. К. Коgan at al., Phys. Rev. 166, 234 (1968).
 63. J. Lewiner at al., J. Appl. Phys. 41, 4070 (1970).
 64. N. S. Shiren, E. B. Tucker, Phys. Rev. Lett. 6, 105 (1961).
 65. Th. Luttenbergen, C. Weis, Appl. Phys. Lett. 1, 119 (1973).
 66. R. Guermeur at al., Phys. Lett. 21, 121 (1966).
 67. G. C. Wetsel, E. L. Kitts, Phys. Rev. Lett. 18, 841 (1967).
 68. А. В. Митин, ФТТ 8, 2744 (1966); в кн. Релаксационные явления в твердых

- телах, М., «Металлургия», 1968, стр. 215. 69. М. J. Buckley, А. Н. Francis, Chem. Phys. Lett. 23, 582 (1974). 70. У. Х. Копвиллем, В. Д. Корепанов, ФТТ 3, 2014, (1961). 71. С. Н. Тоwnes, in Quantum Electronics, v. 1, N.Y., Academic Press, 1960,

- p. 405.
- 72. C. Kittel, Phys. Rev. Lett. 6, 449 (1961).
- 73. Н. В. Карлов, А. А. Маненков, Квантовые усилители, М., Изд. ВИНИТИ,
- 74. E. B. Tucker, Phys. Rev. Lett. 6, 547 (1961).
- 75. E. B. Tucker, in: Quantum Electronics, v. 3, P., Presse Univ., 1964, p. 1787.

- 76. Р. D. Peterson, Е. Н. Jacobsen, Science 164, 1065 (1969). 77. N. S. Shiren, Appl. Phys. Lett. 7, 142 (1965). 78. Е. М. Ганопольский, Д. Н. Маковецкий, ДАН СССР 217, 303 (1974).

- 79. Е. М. Ганопольский, ПТЭ, № 6, 214 (1969). 80. В. Г. Бадалян, Канд. диссертация (Москва, АКИН АН СССР, 1974). 81. В. Р. Нагибаров, У. Х. Копвиллем, ЖЭТФ 45, 2006 (1963); Акуст. ж. 13, 218 (1967). 82. N. S. Shiren, Phys. Rev. Lett. 6, 168 (1961). 83. А. Р. Кессель, У. Х. Копвиллем, ФТТ 4, 2883 (1962).

- 84. Ю. В. Владимирцев, В. А. Голенищев-Кутузов идр., ФТТ 9, 2426 (1967).
- 85. В. А. Голенищев-Кутузов, С. А. Мигачев, Н. А. Шамуков, в кн. VII Всесоюзная акустическая конференция. Рефераты докладов, Харьков, ИССР 417 ИССР 4022
- 87. Труды 1-го Всесоюзного симпозиума по световому эхо (Казань, 1973), Изв. АН СССР, сер. физ. 37, № 11 (1973).
 88. N. S. Shiren, T. G. Kazyaka, Phys. Rev. Lett. 28, 1304 (1972).
- 89. В. А. Голенищев-Кутузов, У. Х. Копвиллем, В. Р. Наги-баров, Письма ЖЭТФ 9, 445 (1968). 90. С. А. Альтшулер, Р. М. Валишев, А. Х. Хасанов, ibid. 10, 179
- (1969).