

из текущей литературы

535.82

ДИНАМИЧЕСКИЕ ПРОЦЕССЫ В ДИЭЛЕКТРИЧЕСКИХ СТЕКЛАХ
ПРИ НИЗКИХ ТЕМПЕРАТУРАХ

Б. П. Смоляков, Е. П. Хаймович

СОДЕРЖАНИЕ

1. Введение	317
2. Низкотемпературные аномалии в диэлектрических стеклах	319
а) Микроскопическая структура стекол (319). б) Низкотемпературные аномалии теплопроводности и теплоемкости в диэлектрических стеклах (320)	
3. Методы теоретического описания аномального поведения диэлектрических стекол	322
а) Модель локализованных низкоэнергетических возбуждений (322).	
б) Описание низкотемпературных свойств стекол с помощью «псевдоспина» $\tilde{S} = 1/2$ (325).	
4. Эффекты насыщения акустическими и электрическими импульсами	326
а) Обнаружение акустической прозрачности в стеклах (326). б) Применение уравнений Блоха к процессам насыщения (327). в) Взаимодействие с электрическими полями (328). г) Зависимость скорости звука и диэлектрической постоянной от температуры (329).	
5. Прямые взаимодействия между двухуровневыми системами	330
6. Генерация когерентных электрических и акустических откликов в стеклах	331
а) Основные понятия и методы наблюдения сигналов эха (331). б) Экспериментальные наблюдения сигналов эха в стеклах (333). в) Модель спектральной диффузии (334). г) Другие эффекты типа эха в стеклах (336).	
7. «Выжигание провала» в неоднородно-упиренной линии	338
8. Заключение	340
Цитированная литература	341

1. ВВЕДЕНИЕ

В последнее время наблюдается повышенный интерес к исследованию неупорядоченных систем таких, как спиновые стекла, аморфные металлы, суперионные проводники и т. д. Наряду с этими системами значительное внимание уделяется такому широкому классу аморфных соединений, как диэлектрические стекла. Эти объекты мало привлекали внимание теоретиков и экспериментаторов ввиду сложности расчетов моделей неупорядоченных систем и отсутствия параметров дальнего порядка. Перелом произошел после появления работ Целлера и Поля¹, впервые обративших внимание на аномальное поведение теплоемкости и теплопроводности различных стекол при низких температурах, и работы Хайнике и других², обнаруживших аномальное поглощение звука в аналогичных объектах. Дальнейшие исследования показали, что низкотемпературные аномалии характерны для всех видов диэлектрических стекол независимо от их состава^{3,4}.

Для объяснения экспериментов было предложено несколько моделей. Наиболее удачной оказалась модель Андерсона, Гальперина, Варма и Филлипса, в которой предполагалось существование в стеклах туннель-

ных переходов, приводящих к широкому энергетическому спектру (10^8 — 10^{12} Гц) локализованных двухуровневых систем. В дальнейшем это привело к феноменологическому описанию нового спектра элементарных возбуждений при помощи «псевдоспина» $\hat{S} = 1/2$. При этом возникла удивительная аналогия между явлениями в спиновом резонансе и низкотемпературными свойствами стекол. Был обнаружен целый ряд эффектов таких, как насыщение и связанное с ним аномальное изменение скорости звука с температурой, просветление среды под действием акустических и электрических импульсов, «выжигание провала» в неоднородно-уширенной линии и обнаружение электрического и звукового эха^{5,6}. При этом необходимо упомянуть, что основное отличие от радиоспектроскопии заключается в чрезвычайно широком спектре двухуровневых систем. Кроме того, предполагается, что число состояний на единичный энергетический интервал является постоянной величиной, либо медленно меняющейся функцией. Одним из следствий этого предположения является вывод о логарифмической зависимости теплоемкости от длительности проведения эксперимента.

Отметим, что в настоящее время не существует последовательной микроскопической теории, обосновывающей наличие локализованных двухуровневых систем в диэлектрических стеклах при низких температурах. Более того, сама возможность существования низкоэнергетического спектра элементарных возбуждений в стеклах до последнего времени вызывала некоторые сомнения. Поэтому обнаружение и исследование когерентных откликов в аморфных образцах при импульсном возбуждении электрическими и звуковыми полями явилось наиболее убедительным подтверждением гипотезы о существовании двухуровневых систем, обусловленных туннельными переходами. Описание процессов формирования фононного эха в стеклах сравнительно узкой полосой частот возбуждающих импульсов по сравнению с уже упомянутым выше широким спектром двухуровневых систем потребовало для своего объяснения привлечения понятия спектральной диффузии⁷. Это, в свою очередь, привело к более глубокому пониманию явления акустического насыщения. В частности, наиболее интересным явился вывод о зависимости ширины спектра насыщаемых частот от длительности насыщающего импульса, что получило в дальнейшем экспериментальное подтверждение. Из сказанного видно, что к настоящему времени накопилось большое количество результатов по динамическим процессам в диэлектрических стеклах при низких температурах. Однако, в литературе нет достаточно полного обзора, отражающего современное состояние данного вопроса, за исключением прекрасной статьи Ханклингера и Арнольда⁸, посвященной исключительно акустическим исследованиям в стеклах до 1975 г. Нами была поставлена задача отразить основные теоретические и экспериментальные результаты по динамическим процессам в диэлектрических стеклах в электрических и звуковых полях. При изложении материала мы сознательно ограничились феноменологическим описанием с помощью понятия «псевдоспина» $\hat{S} = 1/2$, что позволило сделать основной упор на физику явлений и качественно описать всю совокупность многочисленных экспериментальных фактов. На протяжении всего обзора подчеркивается как общность свойств с явлениями магнитного резонанса, так и те отличия, которые возникают вследствие чрезвычайно широкого спектра двухуровневых систем. Несмотря на широкий круг рассматриваемых вопросов, обзор не является полным. Так, например, нами почти не рассматривается аномальное изменение скорости звука с температурой, достаточно подробно изложенное в работе⁸. Следует отметить, что основные представления по этому вопросу не претерпели существенных изменений за последние пять лет.

2. НИЗКОТЕМПЕРАТУРНЫЕ АНОМАЛИИ В ДИЭЛЕКТРИЧЕСКИХ СТЕКЛАХ

а) Микроскопическая структура стекол

Современное представление о микроскопической структуре стекол основывается на гипотезе Захариазена⁹, предположившего, что стекло можно представить в виде неупорядоченной сетки атомов с теми же межатомными расстояниями, что и соответствующая ей кристаллическая структура. Наиболее простым и хорошо изученным является силикатное стекло SiO_2 . Рентгеновские исследования показали, что средние расстояния между двумя ближайшими атомами кремния и кислорода составляют 1,62 Å, а между ближайшими атомами кремния 3 Å, что практически совпадает с межатомными расстояниями в кристаллических модификациях SiO_2 . Однако в стеклах наблюдается большой разброс углов $\text{Si} - \text{O} - \text{Si}$

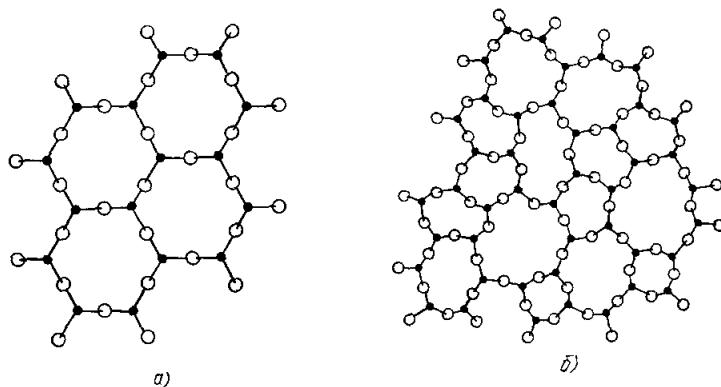


Рис. 1. а) Двумерная схема кристаллической решетки; б) неупорядоченная структура стеклом.

от 120 до 180° (рис. 1). Эксперименты показывают, что порядок в силикатных стеклах сохраняется на расстояниях 10—12 Å. В более сложных случаях иерогилярная сетка многокомпонентных стекол состоит как из плоских единиц типа SiO_2 , так и тетраэдров SiO_4 , соединенных случайным образом.

Впервые на различие в поведении тепловых свойств диэлектрических кристаллов и стекол в интервале температур от 100 до 300 K обратил внимание Киттель¹⁰. Теплопроводность стекол $\chi_{\text{ст}}$ в отличие от $\chi_{\text{кр}}$ падала с понижением температуры и слабо зависела от их состава. Причем $\chi_{\text{ст}}$ была значительно ниже, чем $\chi_{\text{кр}}$. (рис. 2). Киттель предположил, что средняя длина свободного пробега фононов близка по порядку величины к размерам тетраэдров SiO_4 . Это обусловливало малый разброс значений теплопроводности различных стекол по сравнению с кристаллами. Уменьшение теплопроводности с понижением температуры объяснялось различием между плоскими волнами и нормальными модами. В регулярной решетке они совпадают. В стеклах исходная плоская волна искажается и ее можно рассматривать как совокупность нормальных мод с различными собственными значениями. С понижением температуры средняя длина свободного пробега фононов начинает возрастать, становясь больше размера тетраэдрической ячейки. Действительно, Берманом¹¹ в температур-

ной зависимости теплопроводности было обнаружено плато при 10 К, появление которого связывалось с увеличением средней длины свободного пробега в области низких температур. В дальнейшем эта теория была усовершенствована рядом авторов и были даны некоторые количественные

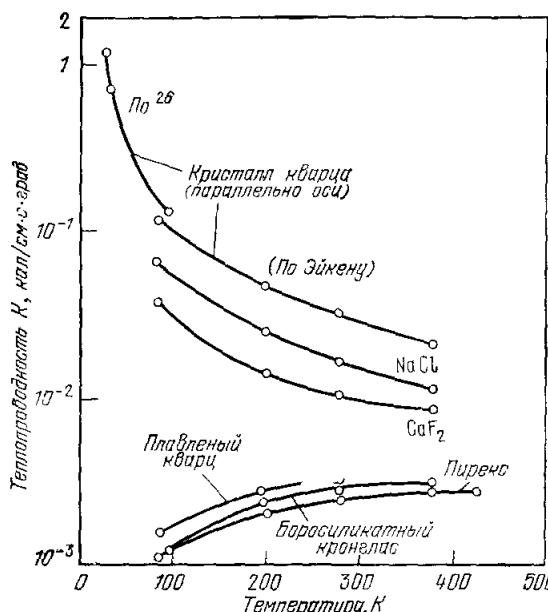


Рис. 2. Температурная зависимость теплопроводности кристаллов и стекол.

оценки¹². Казалось, что тепловые свойства стекол, по крайней мере качественно, объяснялись удовлетворительно. Однако последующие эксперименты потребовали для своей интерпретации кардинального пересмотра всех существующих представлений о механизмах теплопроводности и теплоемкости в стеклах.

б) Низкотемпературные аномалии теплопроводности и теплоемкости в диэлектрических стеклах

Чтобы понять, что ожидалось в стеклах при низких температурах напомним, как ведет себя теплопроводность и теплоемкость в диэлектрических кристаллах. Согласно известной теории Дебая в диэлектрических кристаллах тепло переносится фононами, а длина свободного пробега l определяет скорость обмена энергией между фононами различных мод. Теплопроводность определяется выражением

$$\chi = \frac{1}{3} Cv l, \quad (1)$$

где v — средняя скорость фононов, C — теплоемкость решетки. При низких температурах l становится сравнимой с размерами кристаллического образца и изменение теплопроводности определяется зависимостью теплоемкости от температуры по закону T^3 . Температурам ниже 1 К соответствуют тепловые фононы с длиной волны больше 1000 Å, что в сотни раз превосходит размеры межатомных расстояний и размеры элементарных тетраэдров основной структуры стекол. Поэтому при низких температурах фононы будут распространяться в стеклах как в однородной кристалли-

ческой среде, и не должно быть принципиальной разницы в температурном поведении теплопроводности и теплоемкости аморфных диэлектриков и кристаллов. В работе Целлера и Поля¹ впервые исследовалась теплопроводность различных стекол при низких температурах. Они показали, что во всех изученных стеклах зависимость теплопроводности от температуры в интервале от 0,1 до 1 К определяется выражением $\chi = AT^\sigma$, где $\sigma \approx 1,8$ (рис. 3). Кроме того, была определена температурная зависимость средней длины свободного пробега фононов. Из рис. 4 следует, что длина свободного пробега фононов возрастает с понижением температуры. Это приводит к сближению значений теплопроводностей кварцевого стекла

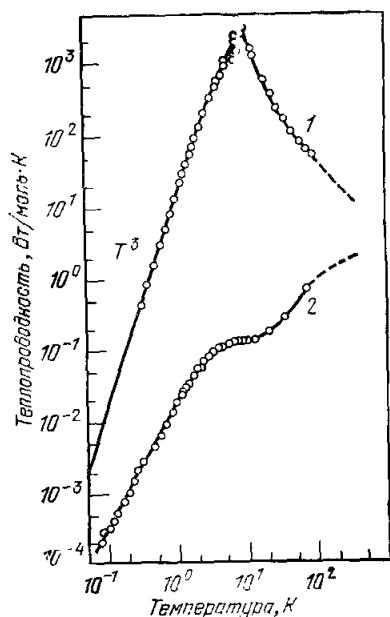


Рис. 3. Зависимость теплопроводности от температуры¹.
1 — кристаллический кварц, 2 — кварцевое стекло.

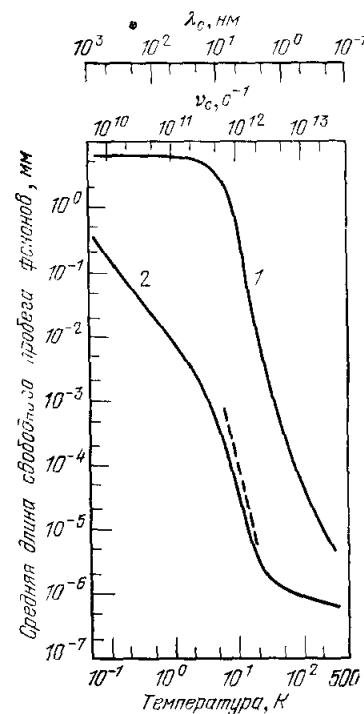


Рис. 4. Зависимость средней длины свободного пробега от температуры¹.
1 — кристаллический кварц, 2 — кварцевое стекло.

и кристаллического кварца при $T < 10$ К (рис. 3). Из рис. 4 следует, что при температурах от 0,1 до 1 К $l \propto \omega^{-2}$. Наряду с этими фактами Целлером и Полом было обнаружено аномальное поведение температурной зависимости теплоемкости

$$C = AT + BT^3, \quad (2)$$

причем линейный член в теплоемкости мало меняется для различных образцов. Эти экспериментальные результаты не объяснялись моделями, основанными на тех или иных модификациях закона Дебая. Затем Стейнсом³ были проведены детальные исследования большого количества образцов. Было обнаружено, что теплопроводность $\chi \sim T^2$ и практически не зависела от примесей. Теплоемкость описывалась выражением (2), причем величина B примерно в 3 раза больше, чем значение, получаемое на основе теории Дебая, а линейный член преобладает ниже 0,2 К. Если теплопроводность не зависела от примесей, то, напротив, увеличение кон-

центрации железа приводило к возрастанию теплоемкости. При наложении магнитного поля $H = 33$ кГс удалось избавиться от влияния магнитных примесей и температурная зависимость теплоемкости практически совпала с аналогичной зависимостью для стекол без магнитных примесей (рис. 5). Для объяснения этих явлений было предложено несколько теорий¹³,

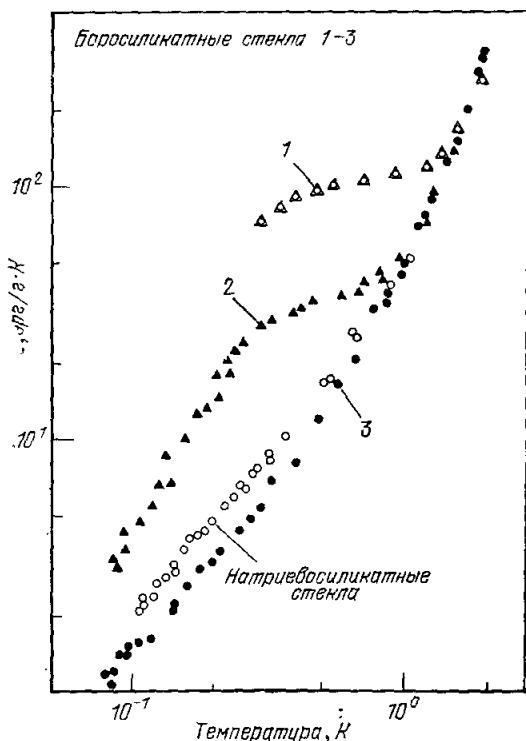


Рис. 5. Изменение теплоемкости с температурой для стекол с разным содержанием магнитных примесей³.
 1 — пирекс № 7740, концентрация Fe 100 ppm; 2 — пирекс № 9700, концентрация Fe 12 ppm; 3 — пирекс № 9700 в магнитном поле $H = 33$ кГс.

но мы подробно остановимся на теории Андерсона, Гальперина, Вармы и Филлипса^{14,15}, которая не только объяснила полученные результаты, но и предсказала ряд новых эффектов, получивших в дальнейшем экспериментальное подтверждение.

3. МЕТОДЫ ТЕОРЕТИЧЕСКОГО ОПИСАНИЯ АНОМАЛЬНОГО ПОВЕДЕНИЯ ДИЭЛЕКТРИЧЕСКИХ СТЕКОЛ

а) Модель локализованных низкоэнергетических возбуждений

В основе этой модели лежит предположение, что во всех диэлектрических стеклах имеются атомы или группы атомов, которые могут находиться почти с одинаковой вероятностью в двух эквивалентных положениях. Такую ситуацию удобно описывать двойной несимметричной потенциальной ямой (рис. 6). Важнейшими параметрами являются: V — высота потенциального барьера, ε — асимметрия энергии двух локальных минимумов, d — расстояние между двумя минимумами. Туннелирование приводит к энергии связи $\Delta = \hbar\omega_0 \exp(-\lambda)$, где ω_0 — частота нулевых колебаний, $\lambda = \hbar^{-1}d \sqrt{2mV}$ — параметр, учитывающий перекрывание волновых функций, m — масса туннелирующей частицы или группы атомов. Туннелирование приводит к снятию вырождения, так что энергети-

Ческое расщепление двух **нижних** уровней равно

$$E = \sqrt{\varepsilon^2 + \Delta^2}. \quad (3)$$

При низких температурах можно ограничиться двумя **нижними** уровнями с расщеплением E и разностью населенностей, описываемой фактором Больцмана $\exp(-E/2kT)$. Величины ε и Δ меняются случайным образом из-за таких факторов, как различное окружение атомов вокруг двух потенциальных минимумов, локальные напряжения и т. д. Это, в свою очередь, обуславливает случайное распределение энергетических расщеплений. Вводя число двухуровневых систем $n(E)$ на единичный энергетический интервал, легко вычислить теплоемкость набора таких локализованных состояний:

$$C = k \int_0^{\infty} n(E) \left\{ \left(\frac{E}{2kT} \right)^2 \frac{\exp(-E/2kT)}{[1 + \exp(-E/2kT)]^2} \right\} dE. \quad (4)$$

В работах^{14,15} делается важное предположение, что $n(E)$ является медленно меняющейся непрерывной функцией E , причем $n(0) \neq 0$. Это сразу приводит к линейной зависимости теплоемкости от температуры:

$$C \propto \frac{\pi^2}{6} k^2 T n(0). \quad (5)$$

Такая модель позволяет также описать взаимодействие двухуровневых систем с электрическими и акустическими полями. Связь между локализованными двухуровневыми системами и фононами возникает из-за деформации двойной потенциальной ямы упругими волнами. Гамильтониан исходной двухуровневой системы можно записать в виде

$$\mathcal{H}_0 = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \varepsilon & \Delta \\ \Delta & -\varepsilon \end{pmatrix}. \quad (6)$$

Считая для простоты, что деформация продольной акустической волной в основном вызывает изменение асимметрии ε , гамильтониан взаимодействия можно представить как

$$\mathcal{H}_1 = -\gamma e \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}, \quad (7)$$

где $\gamma = \partial\varepsilon/\partial e$ — потенциал деформации. Выражая упругие деформации через операторы рождения и уничтожения фононов¹⁴, можно записать матричный элемент между состояниями 1 и 2 гамильтониана (6):

$$\langle k2 | 1 \rangle = \sqrt{\frac{k}{2\rho v_1}} \gamma \frac{\Delta}{E}; \quad (8)$$

здесь ρ — плотность, v_1 — скорость продольной акустической волны с волновым вектором \mathbf{k} . Используя матричные элементы (8), легко подсчитать^{8,16} время T_1 , за которое двухуровневая система, излучая фонон, переходит в нижнее состояние, и время резонансного поглощения фонона

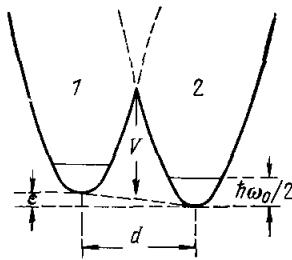


Рис. 6. Двойная несимметрическая потенциальная яма.

V — высота барьера, ε — параметр асимметрии, d — расстояние между энергетическими минимумами, $\hbar\omega_0/2$ — энергия основного состояния.

локализованной модой τ_k :

$$T_1^{-1} = \left(\frac{1}{v_1^5} + \frac{2}{v_t^5} \right) \frac{\gamma^2 \Delta^2 E}{2\pi \rho \hbar^3} \operatorname{cth} \frac{E}{2kT}, \quad (9)$$

$$\tau_{k,\alpha}^{-1} = \frac{\pi \gamma^2 \bar{P} \omega}{\rho v_\alpha^2} \operatorname{th} \frac{E}{2kT}; \quad (10)$$

здесь v_t — скорость поперечной звуковой волны, $\omega = kv \alpha = 1$, t . В высокотемпературном приближении $\hbar\omega < 2kT$ из формулы (10) вытекает, что поглощение $l^{-1} = \tau v$ ведет себя следующим образом:

$$l^{-1} \propto \frac{\omega^2}{T}. \quad (11)$$

Выражение (11) объясняет наблюдавшуюся зависимость средней длины свободного пробега фононов от температуры¹ (рис. 4). Подстановка формул (11) и (5) в (1) дает $\chi \propto T^2$. Таким образом, теория, развитая в работах^{14, 16}, объясняет все основные результаты по аномальному поведению стекол при низких температурах. Наряду с этим из полученных результатов вытекает ряд выводов, которые непосредственно можно проверить экспериментально. Во-первых, зависимость $l^{-1} \propto \omega^2$. Далее, эффект уменьшения поглощения звука, связанный с выравниванием населенностей, учитывается фактором $\operatorname{cth}(E/2kT)$. Такие эффекты, вызываемые насыщением, хорошо известны в магнитном резонансе^{18, 19}. Для симметричной потенциальной ямы ($\varepsilon = 0$, $E = \Delta$) формула (6) полностью совпадает с выражением для времени T_1 , используемым при расчетах однофононных процессов спин-решеточной релаксации²⁰. Однако нужно отметить, что двухуровневые системы обладают такой существенной особенностью, как непрерывное распределение расщеплений. И в некоторых случаях простая аналогия с магнитным резонансом может привести к неправильным выводам.

Другим своеобразным свойством стекол является уже упомянутая выше медленно меняющаяся плотность состояний $n(E)$. В связи с этим интересно проследить, какие ограничения эта особенность накладывает на параметр туннелирования λ ¹⁴. Для этого в формуле (4) заменим плотность состояний $n(E)$ на

$$P(\varepsilon, \lambda) d\varepsilon d\lambda \approx P(0, \lambda) d\varepsilon d\lambda \equiv P(\lambda) d\varepsilon d\lambda, \quad (12)$$

где $P(\varepsilon, \lambda)$ — число двухуровневых систем с параметром асимметрии ε и параметром туннелирования λ на единицу объема. Для заданного значения E параметр λ не может быть меньше λ_{\min} , которое определяется из условия, что поправки к собственным значениям гамильтониана (7) из-за недиагональных элементов малы:

$$\lambda > \lambda_{\min} \equiv \ln \frac{\hbar\omega_0}{E}. \quad (13)$$

Используя формулу (13) и определение Δ , представим выражение (9) в более удобном виде:

$$T_1^{-1} = \left(\frac{1}{v_1^5} + \frac{2}{v_t^5} \right) \frac{\gamma^2 E^3 \exp[-2(\lambda - \lambda_{\min})]}{2\pi \hbar^4 \rho} \operatorname{cth} \frac{E}{2kT}. \quad (14)$$

Энергетическое расщепление меняется непрерывно от λ_{\min} до некоторого обрезающего значения λ_{\max} . Удобно ввести параметр $\eta = \lambda_{\max} - \lambda_{\min} + \ln 2$. Параметр η имеет смысл ширины, в пределах которой $P(\lambda) = p$. Число двухуровневых систем, дающих вклад в теплоемкость, $n(E) = \eta P$. Из формулы (14) видно, что времена релаксации меняются на несколько

порядков при небольших изменениях η . Величина η неизвестна и ее выбирают от единицы до десяти. С другой стороны, можно найти предел λ_{\max} , который определяется самым коротким временем релаксации $T_{1\min}$ для двухуровневых систем с энергетическим расщеплением $E = 2kT$:

$$\lambda < \lambda_{\max} \equiv \frac{1}{2} \ln(\Gamma t), \quad (15)$$

где $\Gamma = T_{1\min}^{-1}$. Если время измерения теплоемкости t становится сравнимым с $T_{1\min}$, то появляется логарифмическая зависимость теплоемкости от времени проведения эксперимента $C \sim \ln(t/T_{1\min})$.

Экспериментального подтверждения такого поведения теплоемкости не получено. Более того, появились результаты, которые противоречат этим выводам^{21,22}. С другой стороны, недавние эксперименты по изучению температурных профилей обнаружили аномальное поведение для тепловых импульсов длительностью 0,1 мс²³.

б) Описание низкотемпературных свойств стекол с помощью «псевдоспина» $\hat{S} = 1/2$

Достоинство модели, разработанной в работах^{14,15}, заключается также в том, что связь двухуровневых систем с акустическими деформациями может быть представлена в форме, аналогичной взаимодействию спинов $\hat{S} = 1/2$ с внешними магнитными полями^{19,24}. Действительно, диагонализуя гамильтониан (6), получаем

$$\hat{\mathcal{H}}_0 = \sum_i E^i \hat{S}_z^i, \quad (16)$$

где E^i определяется формулой (3), значок i означает, что величина E^i относится к конкретной i -й двухуровневой системе. Но преобразование, диагонализующее $\hat{\mathcal{H}}_0$, одновременно приводит гамильтониан взаимодействия (7) к виду

$$\hat{\mathcal{H}}_1 = - \sum_i (B^i e^i \hat{S}_x^i + D^i e^i \hat{S}_z^i), \quad (17)$$

где

$$B^i = \frac{2\gamma\Delta^i}{E^i}, \quad D^i = \frac{2\gamma\epsilon^i}{E^i}. \quad (18)$$

Поскольку двухуровневые системы могут иметь электрический дипольный момент, то, записывая гамильтониан взаимодействия с электрическими полями в виде, аналогичном (7), и проводя диагонализацию, получим вместо выражения (17)

$$\hat{\mathcal{H}}_1 = - \sum_i (\bar{\mu}^i F^i \hat{S}_x^i + \mu^i F^i \hat{S}_z^i), \quad (19)$$

где $\bar{\mu}^i$ и μ^i — недиагональный и диагональный дипольные моменты, F^i — электрическое поле.

Таким образом, мы видим, что для модели с туннелированием существует аналогия со спином $\hat{S} = 1/2$ в «постоянном магнитном поле» E^i , причем это поле меняется от узла к узлу в широких пределах. Гамильтонианы взаимодействия (17) и (19) вызывают как диагональные, так и недиагональные переходы. Имея в виду эту аналогию, будем везде ниже использовать термины «спин», «спин-спиновые взаимодействия», «спин-фононные» вместо «псевдоспин-фононные» и т. д. Это позволяет перенести ряд хорошо известных в магнитном резонансе выводов на двухуровневые

системы, например уравнения Блоха. Не нужно переоценивать формулы (16)–(19). В отличие от обычных магнитных взаимодействий²⁵ гамильтониан (7) инвариантен относительно симметрии по отношению к обращению времени $t \rightarrow -t$.

4. ЭФФЕКТЫ НАСЫЩЕНИЯ АКУСТИЧЕСКИМИ И ЭЛЕКТРИЧЕСКИМИ ИМПУЛЬСАМИ

а) Обнаружение акустической прозрачности в стеклах

Одновременно с первыми результатами Целлера и Поля¹ было обнаружено несоответствие между длиной свободного пробега тепловых фононов l , определяемых по теплопроводности, и данными по распространению продольных акустических волн с частотой 24 ГГц². Тепловые фононы такой частоты вносят основной вклад в теплоемкость при температуре 0,4 К, и их средняя длина свободного пробега оказывается равной 0,005 см. Однако эксперимент показал², что для продольных акустических волн

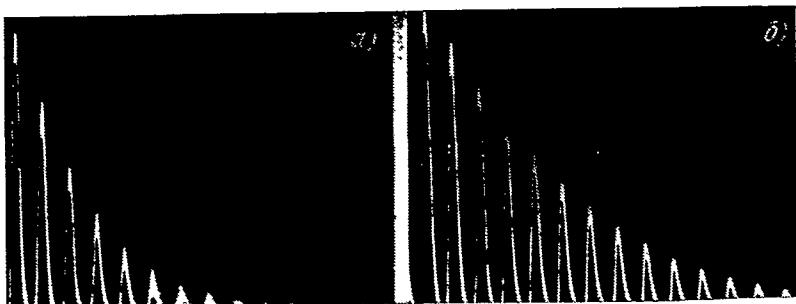


Рис. 7. Затухание импульсов продольных акустических волн в боросиликатном стекле при $T = 0,35$ К⁸.

Мощности, вводимые в образец: а) 5 мкВт/см², б) 1 мВт/см².

даже при $T = 3,5$ К длина свободного пробега $l \sim 0,2$ см. Такое несоответствие получило объяснение в дальнейших экспериментах по исследованию затухания акустических импульсов в стеклах в зависимости от их мощности^{26,27}. Измерялось поглощение акустических импульсов в плавленом кварце и боросиликатном стекле от 0,1 до 2,5 К на частотах 0,4–2 ГГц. Энергия акустических импульсов менялась от 10^{-7} до 10^{-2} эрг. Было обнаружено резкое уменьшение затухания акустических импульсов при увеличении их энергии выше 10^{-3} эрг. На рис. 7 приведены осциллограммы многократно отраженных акустических импульсов частоты 725 МГц, распространяющихся в стекле для двух значений вводимой мощности. Видно, что импульсы большей мощности затухают значительно слабее. Также изучалась зависимость энергии первого отраженного импульса от энергии, вводимой в образец. При $E > 10^{-3}$ эрг среда становится линейной с затуханием $l^{-1} = \ln(E/E_1)/2L$, где L — длина образца. Отметим, что при проведении таких же экспериментов с кристаллическим кварцем акустическое поглощение не зависит от энергии подаваемых импульсов. Во всем энергетическом интервале кристалл кварца является линейной средой.

В работе²⁸ снималась зависимость поглощения акустических импульсов от их интенсивности J на трех фиксированных частотах (рис. 8). В пре-

делах погрешности эксперимента поглощение менялось как ω^2 в соответствии с выводами формулы (11). Для относительно больших интенсивностей поглощение $l \sim J^{-1/2}$. Качественно эти результаты можно пояснить

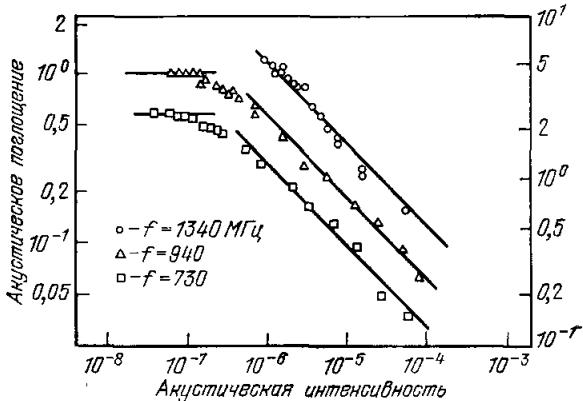


Рис. 8. Зависимость акустического поглощения в боросиликатном стекле для продольных волн от их интенсивности для трех фиксированных значений частоты²⁸.

на основе концепции локализованных двухуровневых систем. Действительно, начиная с определенной интенсивности ($\sim 10^{-7}$ вт/см²), происходит выравнивание населенностей, т. е. возникает насыщение и, как следствие этого, уменьшение поглощения звука.

б) Применение уравнений Блоха к процессам насыщения

Для аналитического описания эффектов насыщения воспользуемся уравнениями Блоха, получившими широкое распространение в магнитном резонансе¹⁹:

$$\left. \begin{aligned} \frac{dM_x(\omega')}{dt} &= -\omega' M_y(\omega') - T_2^{-1} M_x(\omega'), \\ \frac{dM_y(\omega')}{dt} &= \omega' M_x(\omega') + \frac{Be_0}{\hbar} M_z(\omega') - T_2^{-1} M_y(\omega'), \\ \frac{dM_z(\omega')}{dt} &= -\frac{Be_0}{\hbar} M_y(\omega') - T_1^{-1} [M_z(\omega') - M_z^0(\omega')], \end{aligned} \right\} \quad (20)$$

здесь $M(\omega') \equiv \langle S^i \rangle$ с энергиями $E^i = \hbar\omega'$, T_1 , T_2 — продольное и попечерное времена релаксации, Be_0/\hbar — частота нутации в соответствии с уравнениями (17), $M_z(\omega') = \frac{1}{2} \operatorname{th}(\hbar\omega'/2kT)$, деформация e изменяется со временем по закону $e(t) = e_0 \cos(\omega t)$. Используя стандартную методику магнитного резонанса, ищется стационарное решение уравнений (20), из которого следует, что насыщение наступает при выполнении условия $(Be_0/2\hbar)^2 T_1 T_2 > 1$.

В режиме насыщения резонансная кривая становится шире в отношении $[1 + (Be_0/2\hbar)^2 T_1 T_2]^{1/2}$. С учетом уширения формула (10) для поглощения приобретает вид

$$l^{-1} = \frac{\pi B^2 \bar{P}}{\rho v_\alpha^3} \frac{\omega}{\sqrt{1 + (B^2 l_0^2 T_1 T_2 / \hbar^2)}} \operatorname{th} \frac{\hbar\omega'}{2kT}. \quad (21)$$

Введем величину критической интенсивности I_c , равную

$$I_c = \frac{\hbar^2 \rho v_\alpha^3}{2B^2 T_1 T_2}. \quad (22)$$

С учетом выражения (22) запишем поглощение в виде

$$l^{-1} = l_0^{-1} \frac{\tanh(\hbar\omega/2kT)}{\sqrt{1+(J/J_c)}}, \quad (23)$$

где $l_0^{-1} = \pi \bar{B}^2 \omega / \rho v_a^3$, $J = \rho v_a^3 \epsilon_0^2 / 2$. При $J/J_c \ll 1$, соответствующей резонансному поглощению в отсутствии насыщения, формула (23) переходит в формулу (10). При насыщении ($J/J_c \gg 1$)

$$l^{-1} \propto \frac{\omega^2}{T} \sqrt{\frac{J_c}{J}}. \quad (24)$$

Результаты экспериментов²⁶⁻²⁸ находятся в хорошем согласии с выражениями (24). Формулы (21) и (24) приводят к квадратичной зависимости поглощения от частоты как при малых мощностях, так и в режиме насыщения.

в) Взаимодействие с электрическими полями

Как упоминалось выше, существует связь «спинов» не только с акустическими полями, но и с электрической компонентой СВЧ-поля. Действительно, в работах по диэлектрическому поглощению было обнаружено аномальное поведение диэлектрической постоянной от температуры и насыщение электрическим полем^{29,30}. На рис. 9 приведена зависимость диэлектрического поглощения при температуре 0,4 К на частоте 10 ГГц от интенсивности электрической компоненты СВЧ поля.

При интенсивностях $I > 10^{-3}$ Вт/см² начинается процесс насыщения, приводящий к уменьшению поглощения пропорционально $I^{-1/2}$. Аналитическое выражение для диэлектрического поглощения получается путем замены акустических величин соответствующими электрическими параметрами³⁰:

$$\alpha = \frac{4\pi^2 \omega \rho \mu^2}{3c \sqrt{\epsilon_0}} \left(1 + \frac{J}{J_c}\right)^{-1/2} \tanh \frac{\hbar\omega}{2kT}, \quad (25)$$

где c — скорость света, ϵ_0 — диэлектрическая постоянная. Возникает естественный вопрос: ответственны ли те же самые двухуровневые системы

за упругие и электрические свойства. Недавние эксперименты подтвердили это предположение. Измерялось акустическое поглощение в плавле-

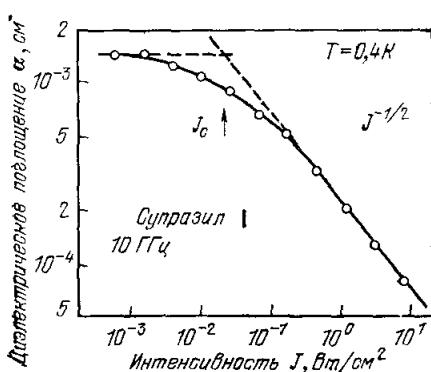


Рис. 9. Зависимость диэлектрического поглощения от интенсивности электрической компоненты СВЧ поля³⁰.

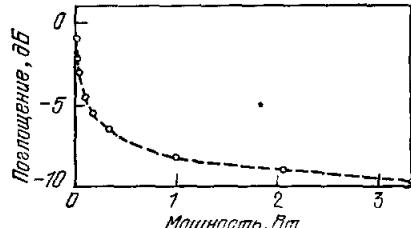


Рис. 10. Изменение ультразвукового поглощения в боросиликатном стекле от мощности электромагнитных импульсов³².

ном кварце и боросиликатном стекле при одновременном воздействии на образец электромагнитного и звукового полей на близких частотах. Измерения проводились на частотах 1 ГГц при 0,5 К³⁰ и 9 ГГц при 1,5 К^{31,32}.

Была обнаружена сильная зависимость ультразвукового поглощения от мощности электромагнитного поля (рис. 10). Эффект возрастает при сближении частот электромагнитных и ультразвуковых импульсов. Аналогичные результаты были получены при использовании чувствительного метода измерений, в котором действие ультразвукового импульса обнаруживалось по изменению электрического импеданса резонансной полости, содержащей образец. Эти эксперименты по своей методике подобны исследованиям по акустическому ядерному магнитному резонансу и акустическому парамагнитному резонансу³³. При этом осциллирующее магнитное поле заменяется электрическим полем. Эти результаты убедительно показали, что двухуровневые системы одновременно обладают как упругими, так и электрическими свойствами.

г) Зависимость скорости звука
и диэлектрической постоянной
от температуры

Используя соотношения Крамерса — Кронига, изменение скорости звука можно выразить через поглощение

$$\frac{\Delta v}{v} = \frac{v(T) - v(T_0)}{v(T_0)} = \int_0^{\infty} \frac{v}{\pi} \frac{l^{-1}(\omega', T) - l^{-1}(\omega', T_0)}{\omega^2 - \omega'^2} d\omega', \quad (26)$$

где перечеркнутый знак интеграла означает интеграл в смысле главного значения.

В принципе исследование скорости звука от температуры дает ту же информацию, что и поглощение звука. Оно меньше зависит от акустической мощности, так как вклад дают как резонансные, так и перезонансные

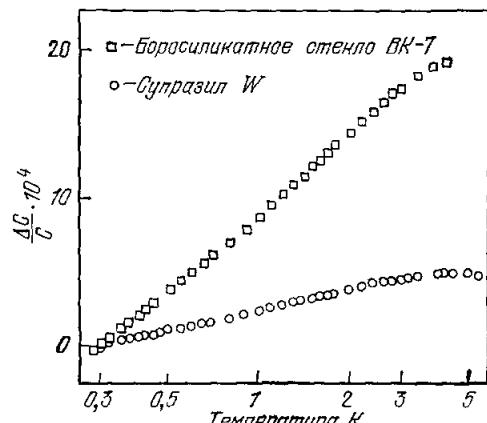


Рис. 11. Относительное изменение скорости света $\Delta c/c \cdot 10^4$ от температуры²⁹.

двууровневые системы. В высокотемпературном приближении $\hbar\omega < 2kT$ с помощью формулы (26) получаем⁸

$$\frac{\Delta v}{v} = k^2 \ln \frac{T}{T_0}, \quad (27)$$

где

$$k^2 = n_0 B^2 / 4 \rho v^2. \quad (28)$$

Подобным образом можно описать и поведение диэлектрической константы в стеклах:

$$\frac{\Delta C}{C} = -\frac{1}{2} \frac{\Delta \epsilon_0}{\epsilon_0} = \frac{p^2}{\epsilon_0} n \ln \frac{T}{T_0}. \quad (29)$$

На рис. 11 приведена зависимость $\Delta C/C$ от температуры в плавленом кварце. Для сравнения крестиками указаны значения $\Delta C/C$ для кристаллического кварца.

5. ПРЯМЫЕ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ МЕЖДУ ДВУХУРОВНЕВЫМИ СИСТЕМАМИ

В уравнениях Блоха (20) феноменологически вводятся два времени релаксации T_1 и T_2 . Время T_1 определяется прямыми однофононными процессами и может быть вычислено по формуле (9). В работе ³⁴ была выдвинута гипотеза о существовании «спин-спинового взаимодействия» в стеклах. При этом по аналогии со спин-спиновыми взаимодействиями в магнитном резонансе удалось определить время

$$T_2 \ll T_1. \quad (30)$$

Дальнейшие исследования показали, что ширина, обусловленная статическими «спин-спиновыми» взаимодействиями в стеклах, часто маскируется динамическими процессами, например спектральной диффузией. Вследствие важности «спин-спиновых» взаимодействий для интерпретации ряда экспериментальных результатов, остановимся подробнее на физической природе возникновения связи между двухуровневыми системами.

Запишем гамильтониан взаимодействия двухуровневых систем с упругими полями, учитывая, что деформации вызывают не только изменения асимметрии ε , но и параметра Δ . Тогда вместо формулы (7) получаем

$$\mathcal{H}_1 = \sum_{\alpha, \beta} \left(e_{\alpha\beta} \frac{\partial \varepsilon}{\partial e_{\alpha\beta}} + e_{\alpha\beta} \frac{\partial \Delta}{\partial e_{\alpha\beta}} \right) \frac{1}{E} \begin{vmatrix} \varepsilon & \Delta \\ \Delta & -\varepsilon \end{vmatrix}, \quad (31)$$

где

$$e_{\alpha\beta} = \partial_\alpha u_\beta + \partial_\beta u_\alpha. \quad (32)$$

Снова, диагонализуя выражение (31) и используя спиновые операторы, получаем вместо формулы (16) гамильтониан взаимодействия в виде

$$\hat{\mathcal{H}}_1 = \sum_{i, \alpha, \beta} (e_{\alpha\beta}^i B_{\alpha\beta}^i \hat{S}_x^i + e_{\alpha\beta}^i D_{\alpha\beta}^i \hat{S}_z^i), \quad (33)$$

$$B_{\alpha\beta}^i = 2 \left(-\frac{\partial \varepsilon^i}{\partial e_{\alpha\beta}} \frac{\varepsilon^i}{E^i} + \frac{\partial \Delta^i}{\partial e_{\alpha\beta}} \frac{\Delta^i}{E^i} \right), \quad (34)$$

$$D_{\alpha\beta}^i = 2 \left(\frac{\partial \varepsilon^i}{\partial e_{\alpha\beta}} \frac{\varepsilon^i}{E^i} + \frac{\partial \Delta^i}{\partial e_{\alpha\beta}} \frac{\Delta^i}{E^i} \right). \quad (35)$$

Учитывая взаимодействия через поле фононов аналогично расчетам в ЭПР ^{35,36}, получаем гамильтониан «спин-спиновых» взаимодействий

$$\hat{\mathcal{H}}_{\text{с. - с}} = \sum_{i, j} J_{ij}^{xx} (\hat{S}_+^i \hat{S}_-^j + \hat{S}_-^i \hat{S}_+^j) + \sum_{i, j} J_{ij}^{zz} \hat{S}_z^i \hat{S}_z^j. \quad (36)$$

Величины J_{ij}^{xx} и J_{ij}^{zz} существенно зависят от соотношения между волновым вектором q и расстоянием r от дефекта i до дефекта j . При $r_{ij} \ll q^{-1}$

$$J_{ij}^{xx} = \frac{B_{\alpha\beta}^i B_{\alpha\beta}^j}{A(r_{ij})^3}, \quad J_{ij}^{zz} = \frac{D_{\alpha\beta}^i D_{\alpha\beta}^j}{A(r_{ij})^3}, \quad (37)$$

где $A = 64\pi r^2$, $B_{\alpha\beta}^i$ и $D_{\alpha\beta}^i$ — потенциалы деформации порядка 1 эВ ³⁴. Таким образом, выражение (36) по структуре подобно хорошо известному в магнитном резонансе гамильтониану диполь-дипольного взаимодействия. Величины J_{ij}^{xx} связывают только «спины» с одинаковыми энергетическими

расщеплениями, в то время как J_{ij}^{zz} связывают все двухуровневые системы. Непрерывное распределение двухуровневых систем принципиально отличает ситуацию в стеклах от случая магнитного резонанса, где неодинаковыми спинами являются, например, электронные и ядерные спины. В стеклах в каком-то смысле все «спины» неодинаковые. Одноковыми двухуровневыми системами можно считать такие, для которых выполняется условие ³⁷ $|E_i - E_j| < J_{ij}^{zz}$. Можно определить концентрацию одинаковых «спинов», для которых необходимо учитывать как J_{ij}^{xx} , так и J_{ij}^{zz} . Оказывается ³⁷, что $c \sim 10^{-2}$. Поэтому ниже при рассмотрении фононного эха ограничимся членами с J_{ij}^{zz} .

Рассмотрение взаимодействия через поле фононов предполагает регулярность решетки. Это описание плохо подходит к таким неупорядоченным системам как стекла. Поэтому несомненный интерес представляет вывод спин-спиновых взаимодействий из уравнений распространения звука в стеклах как непрерывной среде ⁷. При этом $D_{\alpha\beta}^i S_z^i$ играет роль «упругого дипольного момента» и может рассматриваться как источник упругого поля точно так же, как магнитный момент является источником магнитного поля. Поэтому член $e^i D_{\alpha\beta}^i S_z^i$ представляет локализованное в узле i внешнее напряжение, и по закону Гука ³⁸

$$\rho v_t^2 \nabla^2 u_\alpha + \rho (v_e^2 - v_{\frac{1}{2}}^2) \partial_\alpha (\partial_\nu u_\nu) = (D_{\alpha\beta} S_z) \partial_\beta \delta(r). \quad (38)$$

Решение уравнения (38) дает смещение $u_\alpha(r_{ij})$, из которого, используя формулу (32) для изотропной связи $\gamma_{\alpha\beta} = \gamma \delta_{\alpha\beta}$, можно получить тензор упругих деформаций

$$e_{\alpha\beta} = \frac{-2\gamma(\Delta/E) S_z}{4\pi\rho v_{\frac{1}{2}}^3 r^3} \left(\delta_{\alpha\beta} - \frac{3r_\alpha r_\beta}{r^3} \right). \quad (39)$$

Это выражение напоминает хорошо известное из электростатики поле диполя. Подставляя (39) в (33), получаем снова гамильтониан «спин-спиновых» взаимодействий $\mathcal{H}_{c-c} = \sum_{ij} J_{ij}^{zz} S_z^i S_z^j$. Однако для изотропного случая ^{7,34}

$$J_{ij}^{zz} = \sum_{\alpha\beta} 2\gamma^i \frac{\Delta^i}{E^i} e_{\alpha\beta} = 0.$$

Выражение для $J_{ij}^{zz} \neq 0$ можно получить, используя общее решение уравнения (38) ⁷. Зная гамильтониан спин-спиновых взаимодействий (36), можно определить характеристическое время T_2 , а также исследовать динамику импульсных возбуждений аморфных систем.

6. ГЕНЕРАЦИЯ КОГЕРЕНТНЫХ ЭЛЕКТРИЧЕСКИХ И АКУСТИЧЕСКИХ ОТКЛИКОВ В СТЕКЛАХ

а) Основные понятия и методы наблюдения сигналов эха

Обнаружение сигналов электрического и фононного эха в стеклах явилось одним из самых убедительных подтверждений существования двухуровневых систем, обусловленных туннельными переходами. Оказалось, что эхо в стеклах имеет много общего с другими явлениями эха, такими, как спиновое, фотонное, ферромагнитное и др. Поэтому кратко остановимся на основных понятиях эхо-явлений. Обычно возбуждение сигналов эха производится двумя импульсами электромагнитного или звукового поля, либо их комбинацией. Длительность импульсов должна

быть короче всех времен релаксации в исследуемой системе. Сигналы эха появляются через время, равное удвоенному интервалу между возбуждающими импульсами. Сама генерация такого отклика связана с наличием в системе, наряду с необратимыми временами релаксации T_1 и T_2 , неоднородной ширины $1/T_2^*$ ³⁹. Термин «неоднородное уширение» отражает, по существу, наличие в системе взаимодействий, приводящих к разбросу эффективных резонансных частот. Поэтому только часть спинов участвует в резонансном возбуждении. Обычно неоднородная ширина $1/T_2^*$ может рассматриваться как суперпозиция большого числа лоренцевых линий, каждая из которых имеет однородную ширину $1/T_2$, причем, как правило, $T^* < T_2 < T_1$. После резонансного возбуждения спинов СВЧ импульсом начинается процесс расфазировки, вызванный неоднородной шириной $1/T_2^*$. Эту расфазировку удается скомпенсировать путем подачи второго СВЧ импульса через время τ , так что к моменту 2τ система спинов сама генерирует когерентный отклик, который получил название сигнала спинового эха⁴⁰. Амплитуда сигнала спинового эха для простейшего случая $\hat{S} = 1/2$ описывается формулой^{40, 41}

$$E(2\tau) \sim \sin(\omega_1 \tau_1) \sin^2\left(\frac{1}{2} \omega_1 \tau_2\right), \quad (40)$$

где τ_1 и τ_2 — длительности первого и второго импульсов. Амплитуда эха максимальна при $\omega_1 \tau_1 = \pi/2$ и $\omega_1 \tau_2 = \pi$. При одинаковой длительности возбуждающих импульсов сигнал эха максимальен для $\omega_1 \tau_1 = \omega_1 \tau_2 = 2\pi/3$. С увеличением интервала между импульсами интенсивность сигнала уменьшается как $\exp(-t/T_2)$.

Наряду с описанной двухимпульсной методикой существует трехимпульсное возбуждение сигналов. В этом случае имеется ряд откликов, наибольший интерес из которых представляет так называемое стимулированное эхо, затухающее при изменении интервала между вторым и третьим импульсами как $\exp(-t/T_1)$. Благодаря этим особенностям явление эха оказывается сравнительно простым и практически единственным методом прямого измерения времен релаксации T_1 и T_2 .

Описанные выше сигналы спинового и фотонного эха характерны для систем с дискретным спектром. Обнаружены также сигналы эха в чисто классических системах: эхо в плазме⁴², электроакустическое и поляризационное эхо в пьезоэлектрических порошках^{43, 44} и кристаллах⁴⁵ и т. д. Несмотря на столь большое разнообразие объектов, исследуемых методами эха, для генерации в них когерентных откликов должно выполняться общее требование: при возбуждении или формировании сигналов эха необходимо наличие нелинейного механизма. Например, сигнал спинового эха возникает в результате нелинейного взаимодействия спин-системы с магнитной компонентой СВЧ импульса. Такой нелинейный характер взаимодействия обусловливает выражение (40) для амплитуды сигналов спинового эха. Годом⁴⁶ было показано, что для эха в плазме характерно линейное взаимодействие осцилляторных систем с полем СВЧ импульса и нелинейное по амплитуде затухание или дисперсия свободных колебаний после действия возбуждающих импульсов. Интересно отметить, что такие отклики, в отличие от сигналов спинового эха, при увеличении интервала между возбуждающими импульсами вначале возрастают и только затем начинают спадать. До сих пор все известные исследования эха в стеклах не обнаруживали такой особенности. Это является одним из аргументов для использования Хановского механизма формирования сигналов эха в стеклах по аналогии со спиновым или фотонным эхом.

б) Экспериментальные наблюдения сигналов эха в стеклах

Первое сообщение об экспериментальном наблюдении аномального эха в стеклах на частоте 10 ГГц при температуре 4,2 К было опубликовано в работе⁵ (рис. 12). Эффект наблюдался в нулевом магнитном поле и быстро затухал при его увеличении. Физическая природа сигналов эха в стеклах в то время оставалась невыясненной. В работе⁴⁷ предсказывался эффект фононного эха в стеклах, а указанный выше эксперимент интерпретировался как фотонное эхо на уровнях, вызванных туннельными переходами. Впервые эксперимент по фононному эху при сверхнизких температурах 20 мК был осуществлен Голдингом и Грабнером⁶. Сигналы эха наблюдались в плавленом кварце на частоте 0,68 ГГц. Два акустических импульса одинаковой интенсивности генерировались пленочным преобразователем из окси цинка и распространялись в стеклянном образце. Наблюдались сигналы двух- и трехимпульсного эха с временами $T_2 = 24$ мкс и $T_1 = 200$ мкс. Средний коэффициент связи γ_e между продольной акустической деформацией и теми двухуровневыми системами, которые вносят вклад в сигнал фононного эха, может быть легко установлен из импульсной площади θ . Из уравнений Блоха (20) следует, что частоте нутации ω_1 соответствует в нашем случае величина $Be_0/\hbar = \gamma_e/\hbar$ для симметричной двойной потенциальной ямы ($E = \Delta$). Импульсная площадь поэтому определяется как

$$\theta = \frac{\gamma_e}{\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} e \, dt = \frac{\gamma_e l_0 \tau}{\hbar}, \quad (41)$$

что справедливо для импульсов прямоугольной формы. Выражая площадь θ через измеряемую акустическую энергию $E = \frac{1}{2} \rho v^2 l_0^2$, можно определить средний параметр γ , который для плавленого кварца оказался равным 1,6 эВ. Это находится в хорошем согласии с результатами, полученными в экспериментах по насыщению^{25,27}. В экспериментах по фононному эху измеряется не амплитуда сигнала, описываемая формулой (40), а интенсивность, которая, как и в случае фотонного эха⁴⁸, определяется выражением

$$I = I_0 N^2 \sin^2(\theta_1) \sin^4\left(\frac{1}{2} \theta_2\right), \quad (42)$$

где I_0 — интенсивность излучения одной двухуровневой системой, N — их эффективное число в единице объема. Ввиду чрезвычайно большой неоднородной ширины акустический импульс возбуждает только те частоты, которые соответствуют его спектру, с шириной $\hbar\tau^{-1}$, где τ — длительность импульса. Поэтому эффективное число возбужденных двухуровневых систем $N = \tilde{n}\hbar\tau^{-1} \operatorname{th}(\hbar\omega/2kT)$. Представляло интерес проверить справедливость выражения (42) для стекол. Для двух равных импульсов с малой импульсной площадью ($\theta_1, \theta_2 \ll 1$) интенсивность сигнала эха

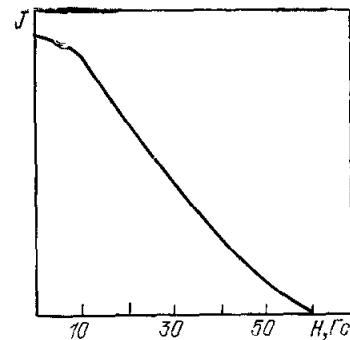


Рис. 12. Спад интенсивности с магнитным полем⁵.
Стекло с примесями $\text{CeO}_2 + \text{TiO}_2$.

пропорциональна

$$I \propto \frac{\theta^6}{\tau^2} \propto \tau^4. \quad (43)$$

В случае двух одинаковых импульсов, возбуждающих максимальный отклик ($\theta = 2\pi/3$), интенсивность сигнала эха определяется иной зависимостью от длительности импульсов:

$$I \propto \tau^{-2}. \quad (44)$$

Результаты экспериментов, находящиеся в хорошем согласии с теоретическими зависимостями (42)–(44), приведены на рис. 13. Действительно,

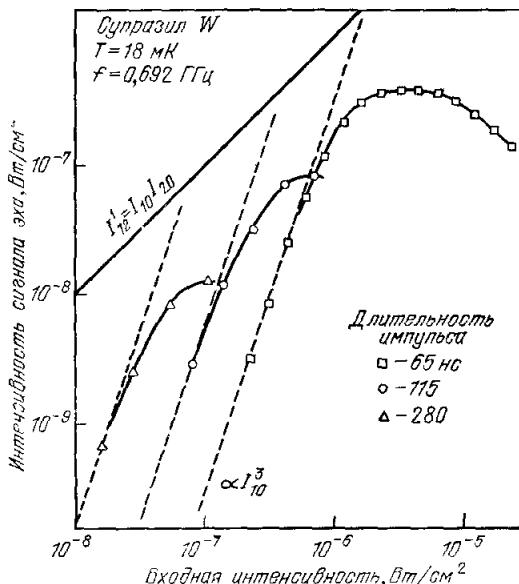


Рис. 13. Величина сигналов эха в зависимости от интенсивности возбуждающих акустических импульсов для трех фиксированных значений их длительности.

из рис. 13 видно, что максимальные интенсивности сигнала эха изменяются как τ^{-2} . Таким образом, было показано, что интенсивность сигнала определяется квадратом числа двухуровневых систем, что характерно для когерентного излучения⁴⁹.

в) Модель спектральной диффузии

Как указывалось выше, появление сигнала спинового эха возможно при наличии в системе разброса резонансных частот отдельных излучателей, обусловливающих неоднородную ширину. Конечно, в случае стекол «спин-спиновые» взаимодействия приводят к статическому сдвигу расщепления и соответствующему разбросу резонансных частот. Согласно формуле (36)

$$E_{\text{эфф}}^i = E^i + \sum_{i \neq j} J_{ij}^{zz} S_z^j. \quad (45)$$

Однако этот сдвиг оказывается чрезвычайно малым по сравнению с уже существующей громадной неоднородной шириной.

Наряду со статическими сдвигами расщеплений возникают интересные эффекты, связанные с динамическими изменениями $E_{\text{эфф}}^i$ ⁵⁰. Рассмотрение такого рода динамических эффектов на основе понятия спектральной диффузии⁵⁰ было впервые проведено в работах^{7,51}. В механизме спектральной

диффузии все спины условно разделяются на два типа: А-спины и В-спины. Расщепления А-спинов находятся в полосе частот СВЧ импульса, а В-спины — все остальные, вне данной полосы частот. Причем их число значительно превосходит количество А-спинов ввиду широкого спектра туннельных расщеплений. Предположим, что в результате спин-решеточной релаксации происходят перевороты В-спинов. Такой процесс приводит к динамическому сдвигу $\Delta\omega(t)$ для А-спинов⁷:

$$\Delta\omega(t) = \frac{2\pi^2}{3} \frac{C_{\text{ср}}}{\hbar} \left\langle \left| \frac{\Delta}{E} \right| \right\rangle_A \left\langle \left| \frac{\Delta}{E} \right| n_B \right\rangle_{E, \lambda}, \quad (46)$$

где $\langle \dots \rangle_A$ — означает усреднение по А-спинам, $C_{\text{ср}} = \sqrt{\langle J_{ij}^2 \rangle}$, $\left\langle \left| \frac{\Delta}{E} \right| n_B \right\rangle$ — относится к В-спинам, перевороты которых приводят к спектральной диффузии. Важной особенностью механизма спектральной диффузии для малых t является монотонная зависимость от времени. Это связано с тем, что вероятность переворота В-спина пропорциональна t . Поэтому для малых времен $t \ll T_1$ ⁷

$$(2\pi)^{-1} \Delta\omega(t) \propto T^4 t. \quad (47)$$

Рассмотрим данный процесс применительно к формированию двухимпульсного фононного эха в стеклах. Наиболее существенный вклад спектральной диффузии в процессе формирования эха заключается в потере фазовой когерентности после 1-го и 2-го импульса. Для двухимпульсной последовательности согласно⁴¹ сигнал эха в момент времени $t = 2\tau$ определяется следующим образом:

$$E(2\tau) = \left\langle \exp \left(i \int_0^\tau \Delta\omega(t) dt - i \int_\tau^{2\tau} \Delta\omega(t) dt \right) \right\rangle, \quad (48)$$

где $\langle \dots \rangle$ означает усреднение по всем А-спинам и всем перевернутым В-спинам. В предельном случае, когда $\tau \ll T_1$, Клаудером и Андерсоном было показано⁵⁰, что

$$E(2\tau) = \exp(-m\tau^2), \quad (49)$$

где

$$m = \lim_{t \rightarrow 0} t^{-1} \Delta\omega(t). \quad (50)$$

Если оценить времена релаксации T_1 ¹² по формуле (9), где $E = 2kT$, то окажется, что условие $\tau \ll T_1$ выполняется при температурах 20–80 мК. Подставляя значение $\Delta\omega(t, T)$ из формулы (47) в (50), получаем

$$m \propto T^4. \quad (51)$$

Определяя T'_2 как время фазовой памяти, при котором эхо в момент 2τ уменьшается в e раз, находим на основании выражений (49) и (51)

$$T'_2 \propto T^{-2}. \quad (52)$$

Одна из основных особенностей механизма спектральной диффузии заключается в том, что спад стимулированного эха зависит от интервала между первым и вторым импульсами τ_{12} ⁴¹. В работе⁷ было показано, что для времен $\tau_{12}, \tau_{13} \ll T_1$

$$E(\tau_{12}, \tau_{13}) = \exp(-m\tau_{12}^2) \exp[-\tau_{12}m(\tau_{13} - \tau_{12})]. \quad (53)$$

В связи с предложенным в работах^{7, 51} механизмом спектральной диффузии были проведены эксперименты по фононному эхо, подтверждающие ряд теоретических выводов⁶. Изучалась температурная зависимость спада

двуихимпульсного эха. Результаты для четырех различных температур приведены на рис. 14. Анализ показывает, что выполняется соотношение $T' \propto T^{-2}$ в соответствии с формулой (52). Аналогичная температурная зависимость наблюдалась и в случае стимулированного эха. Также исследовался спад стимулированного эха для двух различных интервалов между первым и вторым импульсами (рис. 15). Справа на том же рисунке приведены теоретические кривые, вычисленные по формуле (53). Таким образом, результаты экспериментов по двух- и трехимпульсному эха показывают, что механизм спектральной диффузии играет существенную роль в формировании фононного эха в стеклах.

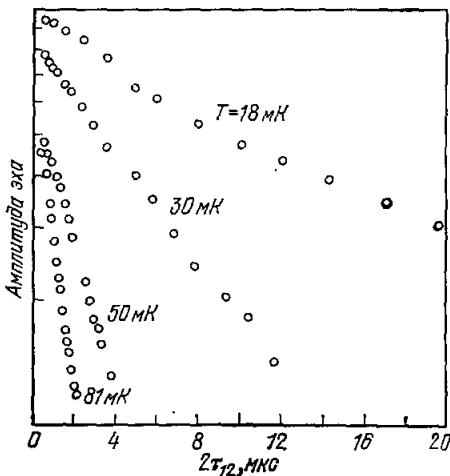


Рис. 14. Спад двухимпульсного эха для четырех различных температур.⁶

Эха обнаруживается в широком классе стекол различного состава как без специального введения парамагнитных примесей, так и с различными парамагнитными примесями редкоземельных ионов и ионов группы же-

г) Другие эффекты типа эха в стеклах

Кроме достаточно изученного фононного эха, в стеклах существует ряд экспериментов по возбуждению когерентных откликов электрическими компонентами СВЧ импульсов (рис. 16). Наблюдаемые сигналы^{5,53-56} обладают рядом особенностей, отличающих их от хорошо известного явления спинового эха. Дальнейшие исследования показали, что эффект

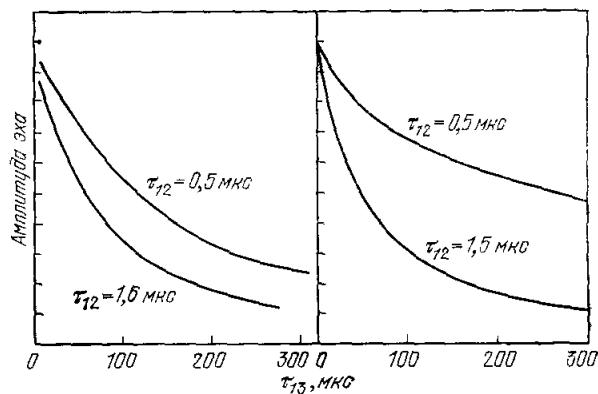


Рис. 15. Спад стимулированного эха для двух фиксированных интервалов между первым и вторым импульсами.^{6,7}

лаза. Характерной особенностью всех стекол с парамагнитными примесями является сильная зависимость интенсивности эха от внешнего магнитного поля. Также интересно отметить одинаковый ход данной зависимости для ионов, принадлежащих одной и той же группе. На рис. 17, 18 приведены типичные кривые для стекол с примесями редкоземельных ионов и ионов группы железа. Естественно возникло предположение, не является ли сигнал эха в стеклах смесью электрического и спинового эха, вызванного неточным расположением образца в максимуме электри-

Необычным для спинового эха является сдвиг и сужение пика максимума интенсивности сигнала эха от интервала между импульсами и от мощности СВЧ импульсов. На рис. 19 приведены зависимости сигнала эха от магнитного поля в цатриевоалюминосиликатном стекле для трех различных значений интервала между возбуждающими импульсами. Из рис. 19 видно, что при увеличении Δt ширина пика уменьшается и его максимум смещается по полю. Поэтому указанное явление, вероятнее всего, обусловленное туннельными переходами в стеклах, и было названо микроволновым туннельным эхом.

Несомненный интерес представляет также обнаружение электрического дипольного эха в плавленом кварце^{55,56} при сверхнизких температурах 20 мК в интервале частот от 10⁸ до 10⁹ Гц. Как обычно, исследовался

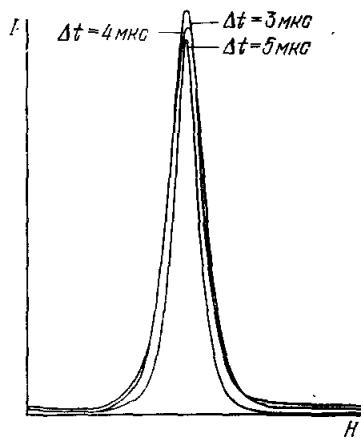
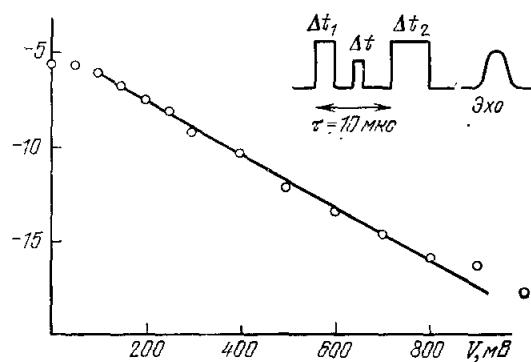


Рис. 19. Зависимость интенсивности сигналов эха от магнитного поля в цатриевоалюминосиликатном стекле с ионами Fe для трех значений интервала Δt между возбуждающими импульсами.



Гис. 20. Зависимость интенсивности сигнала эха от амплитуды статического электрического поля⁵⁷.

Статическое поле действует между первым и вторым СВЧ импульсами.

спад сигналов двух- и трехимпульсного эха как функция интервала между подаваемыми импульсами. Спад носит неэкспоненциальный характер, как и в вышерассмотренном случае фононного эха (см. рис. 13). Времена спада пропорциональны Δt как для двухимпульсного, так и для стимулированного эха, что характерно для механизма спектральной диффузии. Изучалось также влияние электрического поля на формирование сигналов эха^{57,58}. Для этого после первого возбуждающего импульса подавалось статическое электрическое поле в течение времени Δt (рис. 20), и исследовалась амплитуда эха в зависимости от величины электрического поля при фиксированном расстоянии между двумя импульсами. Наложение электрического поля ускоряет естественный процесс расфазировки электрических диполей после первого импульса, в результате чего сигнал эха уменьшается.

7. «ВЫЖИГАНИЕ ПРОВАЛА» В НЕОДНОРОДНО УШИРЕННОЙ ЛИНИИ

В оптической спектроскопии и магнитном резонансе широко известен эффект насыщения отдельных спиновых пакетов неоднородно уширенной линии, который получил название «выжигание провала»^{59, 60}. Математически это вытекает из нелинейной зависимости поглощения от энергии

электромагнитного или звукового поля. Прежде чем останавливаться на его особенностях применительно к стеклам, кратко рассмотрим его проявления в спиновом резонансе. При этом основополагающее значение имеет понятие неоднородно-уширенной линии, рассмотренное выше. Как известно, резонансная кривая неоднородно-уширенной линии является огибающей ансамбля спиновых пакетов, каждый из которых имеет однородную ширину, определяемую необратимыми процессами релаксации.

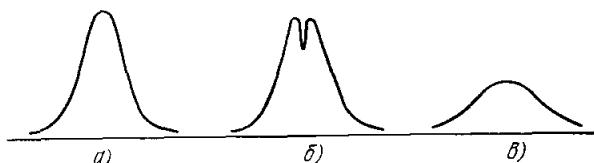


Рис. 21. а) Ненасыщенная линия; б) «выжигание провала» в неоднородно-уширенной линии; в) насыщение однородно-уширенной линии.

Поэтому, если образец с неоднородно-уширенной линией поместить в насыщающее СВЧ поле, то насыщаются те спиновые пакеты, собственные частоты которых удовлетворяют условию $\nu = g\beta H/\hbar$. Все другие спиновые пакеты не насыщаются, и в неоднородно-уширенной линии на месте резонируемых и насыщенных спиновых пакетов образуется провал. Естественно, что однородно-уширенная линия будет насыщаться равномерно, что приведет к уменьшению резонансного поглощения и к уширению всей кривой. На рис. 21 приведены ненасыщенная линия, неоднородно-уширенная линия с «выжженным провалом» и насыщенная однородно-уширенная линия.

Наиболее существенным отличием стекол от магнитного резонанса является огромная неоднородная ширина спектра двухуровневых систем. Поэтому мощный акустический импульс насыщает только те двухуровневые системы, которые лежат в полосе частот данного импульса. Впервые эксперименты подобного рода были проведены в работе ⁶¹. Ввиду своеобразия эксперимента остановимся на методике его проведения несколько подробнее. На один из концов стеклянного стержня (рис. 22), помещенного в широкополосный резонатор, подавался мощный насыщающий импульс J_1 , частота заполнения которого могла меняться. Другой конец стержня помещался в узкополосный резонатор и на него подавался импульс J_2 с интенсивностью, несколько ниже насыщающей. Электрические компоненты импульсов J_1 и J_2 возбуждали в стеклянном стержне при помощи преобразователей из сернистого кадмия акустические импульсы, распространяющиеся во встречных направлениях. Детектировались отраженные акустические импульсы, возбуждаемые J_2 , в зависимости от частоты импульса J_1 . Результаты эксперимента для двух значений интенсивностей насыщающего импульса J_1 приведены на рис. 23. Оказалось, что минимальное поглощение акустического импульса, возбуждаемого в узкополосном резонаторе, наблюдается при совпадении частот импульсов J_1 и J_2 . Наиболее интересен тот факт, что ширины резонансных кривых поглощения звука для двух различных интенсивностей импульса J_1 , отличающихся на порядок, совпадают. Штриховой линией приведена кривая

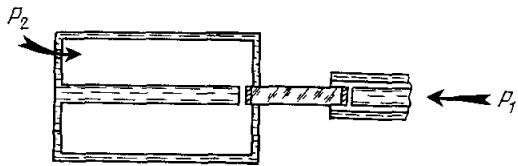


Рис. 22. Схема экспериментальной установки для исследования неоднородной ширины двухуровневых систем ⁶¹.

которая имела бы место в случае однородно-уширенной линии в соответствии с рис. 21, в.

Возникает интересный вопрос, чем определяется ширина «выжженного провала» и как она будет видоизменяться после выключения насыщающего импульса? При воздействии импульса на спиновую систему ширина

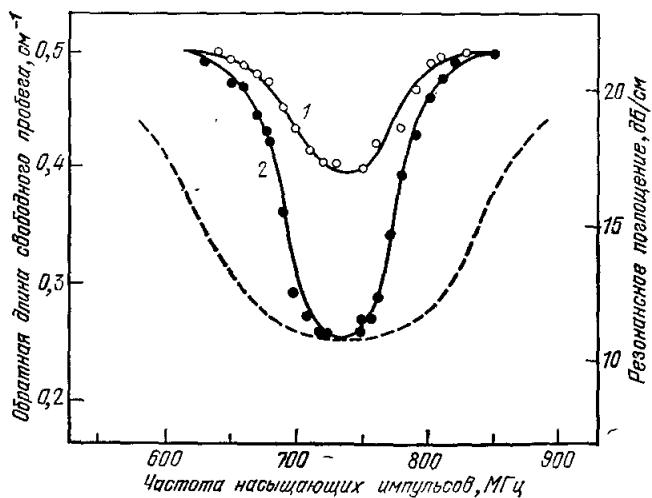


Рис. 23. Резонансное поглощение пробного акустического импульса в зависимости от частоты импульса I_1 в боросиликатном стекле при $0,55\text{ K}$ ⁶¹.

Кривая 1 соответствует интенсивности $I_1 = 5 \cdot 10^{-8}\text{ Вт/см}^2$, 2 — $I_1 = 5 \cdot 10^{-7}\text{ Вт/см}^2$.

провала определяется временем жизни квантовых состояний, между которыми происходят переходы. Теоретические и экспериментальные исследования эха в стеклах^{6,7} показали, что существенный вклад в ширину вносит механизм спектральной диффузии. Более того, ширина $\Delta\omega(t, T)$

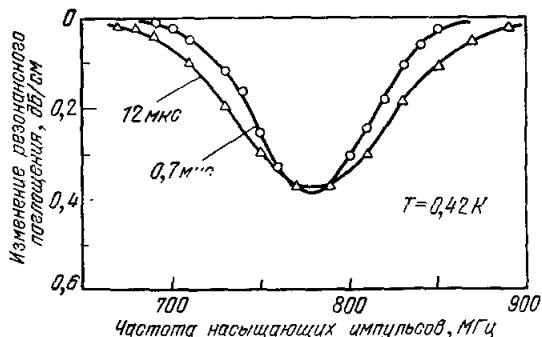


Рис. 24. Изменение резонансного поглощения от частоты насыщающих импульсов различной длительности⁶².

в ряде случаев больше T_1^{-1} , в связи с чем последней можно пренебречь. Выше (см. формулу (47)) было показано, что ширина $\Delta\omega(t) \propto t$. В данном случае t — не что иное, как длительность подаваемого импульса. Поэтому ширина провала должна зависеть от длительности насыщающих импульсов, что недавно⁶² было экспериментально подтверждено (рис. 24).

8. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В последнее время число работ, посвященных исследованию диэлектрических стекол физическими методами, быстро растет. Причем большинство результатов получило достаточно четкое объяснение на основе

модели Андерсона — Гальперина — Варма — Филлипса. Тем не менее по ряду аспектов приведенная теория не дает удовлетворительного объяснения. Например, по вопросу о зависимости теплоемкости от длительности проведения эксперимента имеются противоречивые результаты. Следует отметить трудность проведения подобных экспериментов. До сих пор загадочным остается поразительное сходство в акустических свойствах стекол самого различного состава. Открытым остается вопрос о роли примесей OH, обладающих дипольным моментом, и их вкладе в электрическое эхо в стеклах^{63,64}. В частности, появились работы⁶⁵, в которых высказывается предположение о существовании двух типов центров, дающих сигнал электрического эха: примеси OH и двухуровневые локализованные состояния. Существует ряд работ, в которых предпринимаются попытки преодолеть указанные трудности путем частичных изменений модели Андерсона — Гальперина — Варма — Филлипса либо построением микроскопической теории низкотемпературных аномалий в стеклах⁶⁶⁻⁶⁹. Однако результаты этих работ не получили к настоящему времени широкого распространения. По этой причине в настоящем обзоре мы ограничились подробным рассмотрением вопросов, получивших экспериментальное подтверждение.

Характерно, что при исследовании свойств диэлектрических стекол мы сталкиваемся с теми же особенностями, которые возникают в совершенно других типах аморфных соединений. К настоящему времени обнаружен ряд аномалий теплоемкости, теплопроводности, изменение скорости звука и диэлектрической проницаемости с температурой в суперионных проводниках, аморфных металлах и в ряде других аморфных систем⁷⁰⁻⁷⁷. Нужно отметить, что указанные физические процессы удивительным образом напоминают поведение диэлектрических стекол. Более того, делается ряд предположений, что к указанным объектам в ряде случаев также применима двухуровневая модель с учетом специфики конкретных систем, например, электронов проводимости в аморфных металлах. Это свидетельствует о ряде универсальных свойств, присущих неупорядоченным системам, исследованию которых в последнее время уделяется большое внимание.

Казанский физико-технический институт
АН СССР

ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. Zeller R. C., Pohl R. O.—Phys. Rev. Ser. B, 1971, v. 4, p. 2029.
2. Heinicke W., Winterling G., Dransfeld K.—J. Acoust. Soc. Am., 1971, v. 49, p. 954.
3. Stephens R. B.—Phys. Rev. Ser. B, 1973, v. 8, p. 2896; 1976, v. 13, p. 852.
4. Krause J. T.—J. Appl. Phys., 1971, v. 42, p. 3035.
5. Копивиллем У. Х., Осипов В. И., Смоляков Б. П., Шарипов Р. З.—УФН, 1971, т. 105, с. 767.
6. Golding B., Graebner J. E.—Phys. Rev. Lett., 1976, v. 37, p. 852.
Graebner J. E., Golding B.—Phys. Rev. Ser. B, 1978, v. 19, p. 964.
7. Black J. L., Halperin B. I.—Ibid., 1977, v. 16, p. 2879.
8. Hunklinger S., Arnold W.—In: Physical Acoustics. V.12/Ed. by R. N. Thurston, W. P. Mason, N. Y.: Academic Press, 1976.
9. Zachariasen W. H.—J. Am. Ceram. Soc., 1932, v. 54, p. 3841.
10. Kittel C.—Phys. Rev., 1949, v. 75, p. 972.
11. Bergman R.—Ibid., 1949, v. 76, p. 315.
12. Klemens P. G.—Proc. Roy. Soc., Ser. A, 1951, v. 208, p. 108.
13. Fulde P., Wagner H.—Phys. Rev. Lett., 1971, v. 27, p. 1280.
Takeno S., Goda M.—Progr. Theor. Phys. (Kyoto), 1972, v. 48, p. 1468.
14. Anderson P. W., Halperin B. I., Varma C.—Phil. Mag. 1972, v. 25, p. 1.
15. Phillips W. A.—J. Low Temp. Phys., 1972, v. 7, p. 351.

16. Jäckle J.—Zs. Phys., 1972, Bd 257, S. 212.
17. Sussmann J. A.—J. Phys. and Chem. Sol., 1967, v. 28, p. 1643.
18. Альтшуллер С. А., Козырев Б. М. Электронный парамагнитный резонанс.—М.: Физматиз, 1961.
19. Абрагам А. Ядерный магнетизм.—М.: ИЛ, 1963.
20. Абрагам А., Блини Б. Электронный парамагнитный резонанс переходных ионов.—М.: Мир, 1972.
21. Gouba W. M., Tait R. A.—Phys. Rev. Lett., 1975, v. 34, p. 1220.
22. Kummer R. B., Narayananamurti V., Dynes R. E.—Bull. A.P.S., 1978, v. 23, p. 336.
23. Lewis J. E., Lasjaunias J. C., Schumacher G.—J. Phys. Ser. C., 1978, v. 6, p. 967.
24. Feynman R. P., Vernon F. L., Hellwarth R. W.—J. Appl. Phys., 1957, v. 28, p. 49.
25. Ландau Л. Д., Лифшиц Е. М. Квантовая механика. Нерелятивистская теория.—М.: Наука, 1974, § 111.
26. Golding B., Graebner J. E., Halperin B. I., Schutz R. J.—Phys. Rev. Lett., 1973, v. 30, p. 223.
27. Hunklinger S., Arnold W., Stein S.—Phys. Lett. Ser. A, 1973, v. 45, p. 341.
28. Arnold W., Hunklinger S., Stein S., Dransfeld K.—J. Non-Cryst. Sol., 1974, v. 14, p. 192.
29. Schickfus M. V., Hunklinger S., Piche L.—Phys. Rev. Lett., 1975, v. 35, p. 876.
30. Schickfus M. V., Hunklinger S.—Phys. Lett. Ser. A, 1977, v. 64, p. 144.
31. Laermans C., Arnold W., Hunklinger S.—J. Phys. Ser. C, 1977, v. 10, p. L-169.
32. Doussineau P., Levelut A., Ta T.—J. de Phys. Lett., 1977, t. 38, p. L-37.
33. Proctor W. G., Tantilla W. H.—Phys. Rev., 1956, v. 101, p. 1757. Jacobsen E. H., Shireen N. G., Tucker E. B.—Phys. Rev. Lett., 1959, v. 3, p. 31.
34. Joffrin J., Levelut A.—J. de Phys., 1975, t. 36, p. 811.
35. Аминов Л. К., Кочедаев Б. И.—ЖЭТФ, 1962, т. 42, с. 1303.
36. McMahon D. U., Silsbee R. H.—Phys. Rev. Ser. A, 1964, v. 135, p. 91.
37. Szeftel J., Allouli H.—H. Non-Cryst. Sol., 1978, v. 29, p. 253.
38. Ландau Л. Д., Лифшиц Е. М. Теория упругости.—М.: Наука, 1965.
39. Portis A. M.—Phys. Rev., 1953, v. 94, p. 1074.
40. Nahm E. L.—Ibid., 1950, v. 80, p. 580.
41. Mims W. B.—In: Electron Paramagnetic Resonance/ Ed. S. Geschwind, N. Y., Lnd.: Plenum Press, 1972.
42. Hill R. M., Kaplan D. E.—Phys. Rev. Lett., 1965, v. 14, p. 1062.
43. Попов Н. С., Крайник Н. Н.—ФТТ, 1970, т. 12, с. 3022.
44. Кессель А. Р., Сафин И. А., Гольдман А. М. ФТТ, 1970, т. 12, с. 3070.
45. Конвиллем У. Х., Смоляков Б. П., Шарипов Р. З.—Письма ЖЭТФ, 1971, т. 13, с. 558.
46. Gould R. W.—Phys. Lett., 1965, v. 19, p. 477.
47. Конвиллем У. Х.—УФЖ, 1976, т. 21, с. 1215.
48. Abella I. D., Kurnit N. A., Hartman S. R.—Phys. Rev., 1966, v. 141, p. 394.
49. Dicke R. H.—Ibid., 1954, v. 93, p. 99.
50. Klauder J. B., Anderson P. W.—Ibid., 1962, v. 125, p. 912.
51. Hu P., Walker L. R.—Sol. State Comm., 1977, v. 24, p. 813.
52. Hu P., Hartman S. R.—Phys. Rev. Ser. B, 1974, v. 9, p. 1.
53. Смоляков Б. П., Хаймович Е. П.—Письма ЖЭТФ, 1979, т. 24, с. 464.
54. Смоляков Б. П., Хаймович Е. П.—ФТТ, 1980, т. 22, с. 1536.
55. Bernard L., Piche L., Schumacher G., Joffrin J., Graebner J. E.—J. de Phys. Lett. Ser. L, 1978, t. 39 p. 126.
56. Schickfus M. V., Golding B., Arnold W., Hunklinger S.—J. de Phys. Ser. C-6, 1978, t. 39, p. 959.
57. Bernard L., Piche L., Schumacher G., Joffrin J.—Ibid., Ser. C-6, 1978, t. 39, p. 957.
58. Смоляков Б. П., Хаймович Е. П.—В кн. Материалы XI Всесоюзной конференции по акустоэлектронике и квантовой акустике, Душанбе, 1981.
59. Fechner G.—Phys. Rev., 1959, v. 114, p. 1219.

60. Allen L., Eberly J. H. Optical Resonance and Two-level Atoms.— N. Y.: 1975.
61. Arnold W., Hunklinger S.— Sol. State Com., 1975, v. 17, p. 883.
62. Arnold W., Martinon C., Hunklinger S.— J. de Phys., Ser. C-6, 1978, t. 39, p. 961.
63. Shireen N. S., Arnold W., Kazayaka T. G.— Phys. Rev. Lett., 1977, v. 39, p. 239.
64. Bernard L., Piche L., Schumacher G., Joffrin J.— J. Low Temp. Phys. 1979, v. 35, p. 411.
65. Golding B., Schickfus M. V., Hunklinger S., Dransfeld K.— Phys. Rev. Lett., 1979, v. 43, p. 1817.
66. Smith T. L., Anthony P. J., Anderson A. C.— Phys. Rev., Ser. B, 1978, v. 17, p. 4997.
67. Klein M. W., Fischer B., Anderson A. C., Anthony P. J.— Ibid., 1978, v. 18, p. 5887.
68. Чабан И. А.— ФТТ, 1979, т. 21, с. 1444.
69. Fischer B., Klein M. W.— Phys. Rev. Lett., 1979, v. 43, p. 289.
70. Graebner J. E., Golding B., Schutz B. J., Hsu F. S. L., Chen H. S.— Ibid., 1977, v. 39, p. 1386.
71. Matey J. R., Anderson A. C.— J. Non-Cryst. Sol., 1977, v. 23, p. 129.
72. Löhniesen V., Steglich H. V.— Phys. Rev. Lett., 1977, v. 39, p. 1205.
73. Stephens R. B., Cieloszyk G. S., Salinger G. L.— Phys. Lett. Ser. A, 1972, v. 38, p. 215.
74. Golding B., Graebner J. E., Haemmerle W. H.— In: Proc. of Intern. Conference on Lattice Dynamics, P.: Flammarion, 1978, p. 348.
75. Doussineau P., Levelut A., Bellessa G., Bethous O.— J. Phys. Lett. Ser. L, 1977, t. 38, p. 483.
76. Matey J. R., Anderson A. C.— Phys. Rev. Ser. B, 1978, v. 17, p. 5029.
77. Matsumoto D. S., Reynolds Jr., Anderson A. C.— Phys. Rev. Ser. B, 1979, v. 19, p. 4277.