

АКУСТИЧЕСКИЙ МАГНИТНЫЙ РЕЗОНАНС Cr^{3+} В LiNbO_3

Б.П.Смоляков, Л.М.Мейльман, В.П.Клюев, И.А.Шпилько, У.Х.Коввилем

При температуре $4,2^\circ\text{K}$ на частоте $\nu_0 = 10^{10}$ гц в звуковом резонаторе с упругой добротностью $Q \sim 10^6$, выполненном из полидоменного монокристалла LiNbO_3 , наблюдалось зависящее от величины статического магнитного поля H_z резонансное поглощение гиперзвука, обусловленное примесными ионами Cr^{3+} (ионная концентрация $\sim 0,05\%$). Насколько нам известно, это первое непосредственное наблюдение электронного акустического магнитного резонанса (АПР) [1] в сегнетоэлектрике. В ранее выполненных работах на кварце [2-4] взаимодействие гиперзвука со спин-системой примесных центров было обнаружено косвенным путем методом насыщения ЭПР звуком. Однако при совпадении частоты гиперзвука с частотой ЭПР не было обнаружено резонансного изменения интенсивности ЭПР.

Примененный образец имел длину $1,6$ см , объем $V = 0,7$ см^3 и оптически плоские и параллельные с точностью до $10''$ торцы. Плоскости торцов были параллельны оптической оси C_3 кристалла, и звуковые волны распространялись перпендикулярно направлению C_3 . Гиперзвук генерировался непосредственно в тонком слое торца, помещенного в пучность электрического поля подстраиваемого коаксиального резонатора. Возбуждение производилось СВЧ импульсами длительности $\tau = 0,5 \cdot 10^{-6} - 10^{-6}$ сек при коэффициенте преобразования $\sim 5 \cdot 10^{-4}$. Отраженные от противоположного торца звуковые импульсы попадают в приемное устройство с пороговой чувствительностью $\sim 10^{-13}$ вт .

На рис.1 приведены осциллограммы затухания звуковых импульсов при $4,2^\circ\text{K}$: a - вдали от резонанса и b - при акустическом магнитном резонансе в точке $H_{z0} = 3120$ гс ($H_z \parallel C_3$) максимального поглощения. Форма резонансной линии, приведенной на рис.2, оказалась асимметричной с шириной $\Delta H = 184$ гс на полуинтенсивности. Коэффициент дополнительного звукового поглощения, обусловленный взаимодействием со спинами Cr^{3+} , $\alpha_0 \sim 0,07$ см^{-1} .

По данным работ [5,6] спектр ЭПР иона Cr^{3+} в LiNbO_3 описывается аксиальным спиновым гамильтонианом $H_z(S = 3/2)$ с константой кристаллического поля $D = 0,45 \pm 0,05$ см^{-1} и факторами спектроскопического расщепления $g_{\parallel} = g = 1,929$ и

$$g_{\perp} = 2g \left[1 - \frac{3}{16} (h\nu_0 / 2D)^2 \right] \quad (h\nu_0 \ll 2D).$$

На нашем образце при комнатных температурах в интервале $0 \leq H_z \leq 5$ кгс наблюдается одна асимметричная линия ЭПР с шириной между точками перегиба $\Delta H_e = 360$ гс , при $H_{z0} = 3180$ гс , соответствующая центральному переходу $|1/2\rangle \leftrightarrow |-1/2\rangle$. Сравнение хода резонансного значения H_{z0} для ЭПР и АПР в зависимости от направления H_z относительно C_3 показывает, что АПР также обусловлен переходом $|1/2\rangle \leftrightarrow |-1/2\rangle$.

Обнаруженная нами корреляция между частотой ЭПР иона Cr^{3+} и частотой резонансного поглощения гиперзвука в LiNbO_3 показывает, что резонансное изменение коэффициента преобразования η энергии гиперзвука в энергию электромагнитного поля (которое фактически измеряет приемник) связано с квантовыми переходами спинов Cr^{3+} . Так как гиперзвук возбуждался непосредственно в поверхностном слое торца кристалла LiNbO_3 , содержащим примеси Cr^{3+} , то из-за просачивания электромагнитного поля в образец изменение η могло быть обусловлено ЭПР.

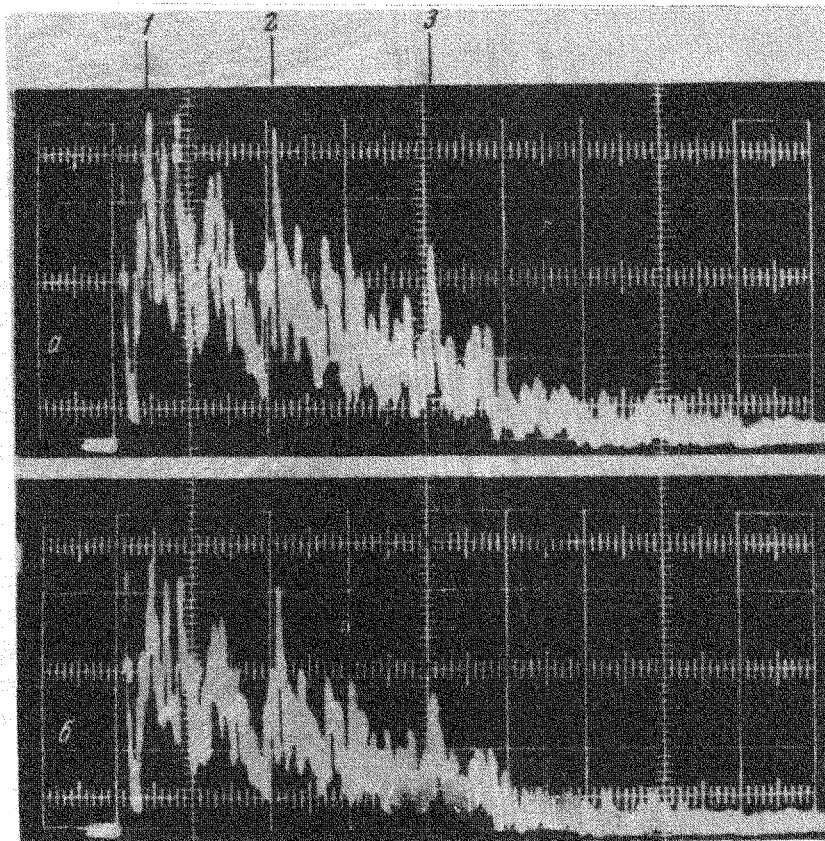


Рис.1. Затухание звуковых импульсов в LiNbO_3 при $4,2^\circ\text{K}$: *a* – вдали от резонанса, *б* – при акустическом магнитном резонансе в поле $H_{z0} = 3120 \text{ вc}$ ($H_{z0} \parallel C_3$). Осциллограммы сняты с выхода видеоусилителя супергетеродинного приемного устройства. Временная развертка 10 мксек/см

Прежде всего отметим, что изменение η из-за ЭПР привело бы к тому, что осциллограмма *б* получилась бы из *а* путем уменьшения амплитуды всех эхо-сигналов в одно и то же число раз. Как видно из рис.1 это не имеет места. В частности, для помеченных на рис.1 импульсов 1, 2, и 3 отношения амплитуд соответственно равны 1,24; 1,28 и 1,39; т.е. с возрастанием пути, пройденного звуковой волной, поглощение возрастает, что характерно для АПР. В LiNbO_3 по мере возрастания

тания пройденного пути картина отраженных эхо-импульсов искажается вследствие интерференции между ними. Поэтому приведенная форма кривой поглощения снималась нами по изменению амплитуды первого отраженного импульса.

Кроме того, нами были поставлены следующие контрольные эксперименты, подтверждающие отсутствие вклада ЭПР в форму линии звукового поглощения. 1. Образец LiNbO_3 был полностью вынесен из электромагнитного резонатора. Звук же был возбужден в кварцевом цилиндре длины 25 мм и передан обычным способом в LiNbO_3 . 2. Диаметр отверстия связи электромагнитного резонатора с образцом был уменьшен

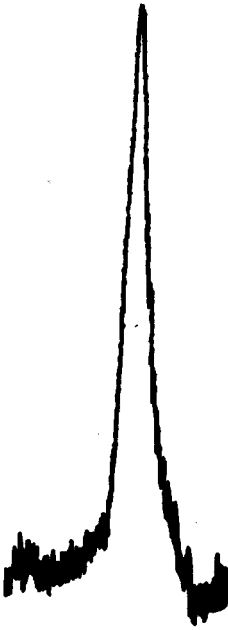


Рис.2. Форма линии акустического магнитного резонанса в зависимости от $H_{z0} \parallel C_3$ при $4,2^\circ\text{K}$. H_{z0} возрастает направо, одно деление соответствует 530 Гс. Кривая получена путем выделения первого из эхо-импульсов, изображенных на рис.1 и дальнейшего его накопления и записью на самописец ЭПП-09М2. В результате накопления выросло также и отношение сигнала к шуму по сравнению с этим отношением на осциллограммах а и б

до 3 мм при диаметре образца 8 мм, что должно было привести к существенному ослаблению магнитной составляющей поля в образце. В этих опытах не было обнаружено изменения коэффициента поглощения звука в LiNbO_3 .

Результаты АПР могут быть описаны при помощи формул:

$$\alpha_0 = (\zeta v_{\parallel}^3 \hbar)^{-1} \pi \Delta n \nu_0 g(\nu_0) G^2 \langle 1/2 | H_0 | -1/2 \rangle^2, \quad H_{\Phi} = \epsilon_{\parallel} G H_0, \quad (1)$$

где H_{Φ} — эффективный оператор энергии спин-фононного взаимодействия Cr^{3+} в LiNbO_3 , ϵ_{\parallel} — относительная деформация, обусловленная продольными звуковыми колебаниями, G — константа спин-фононного взаимодействия, H_0 — безразмерная операторная часть, ζ — плотность кристалла, v_{\parallel} — скорость распространения продольных звуковых колебаний перпендикулярно C_3 , Δn — разность заселенностей, $g(\nu_0)$ — форм-фактор однородно уширенной линии, $\langle 1/2 | H_0 | -1/2 \rangle$ — матричный элемент.

Подставляя значения $\nu_H = 1,1 \cdot 10^6$ см/сек, $\zeta = 4,64$ г/см³, $\alpha_0 = 0,07$ см⁻¹, $\Delta n = (h\nu_0/kT) N_0 V \Delta H_1 (\Delta H)^{-1}$, $g(\nu_0) = 10^{-7}$ сек, $N_0 = 2 \cdot 10^{22}$ см⁻³, получим $G \sim 10^{-15} | \langle 1/2 | H_0 | -1/2 \rangle |^2$ эрг/ед.деформации. Здесь N_0 — число молекул LiNbO₃ в единице объема и $\Delta H_1 (\Delta H)^{-1} \sim 10^{-1}$ описывает долю спинов, которые из-за неоднородного уширения линии одновременно участвуют в резонансе, ΔH_1 соответствует однородной ширине линии. При увеличении угла $\theta \leq \pi/2$ между H_z и C_3 ширины линий ЭПР и АПР возрастают. Для $\theta = \pi/2$ имеем $\Delta H \sim 300$ гс, $\alpha_0 \sim 0,035$ см⁻¹.

Для вычисления $| \langle 1/2 | H_0 | -1/2 \rangle |^2 = b$ необходимо знание механизма спин-фононного взаимодействия. 1. Если звук взаимодействует с Cr³⁺ посредством механизма Ван-Флека [7], то H_0 квадратичен по спину. При $H_z \parallel C_3$ и в отсутствие в спиновом гамильтониане H_s ромбических членов $b = 0$. Характер формы линии ЭПР и АПР указывает на то, что в H_s могут присутствовать члены типа $E(S_x^2 - S_y^2)$, $E \sim (0,05 - 0,1)$ см⁻¹. Тогда $b \sim (E/D)^2$ и $G \sim 10^{-14}$ эрг/ед.деформации, что в 10 раз больше значения G для Cr³⁺ в Al₂O₃ [8]. Так как из формы линии ЭПР и АПР следует, что в образце имеются большие градиенты внутренних полей, то возможно, что под действием звука ионы Cr³⁺ совершают движения между областями, где они испытывают различные внутренние поля [9]. В этом случае $b \sim 1$ и $G \sim 10^{-15}$ эрг/ед. деформации. Такой механизм спин-фононного взаимодействия был обнаружен в кварце [2-4], причем полученная нами зависимость α_0 от θ напоминает зависимость α_0 от θ для парамагнитных центров в кварце.

Сравнение G для Cr³⁺ в Al₂O₃ и LiNbO₃ показывает, что наличие электрических доменов существенным образом сказывается на характере спин-фононного взаимодействия.

Казанский
физико-технический институт
Академии наук СССР

Поступило в редакцию
16 ноября 1967 г.

Литература

- [1] С.А.Альтшулер. ДАН СССР, 85, 1235, 1952.
- [2] E.H.Jacobsen, N.S.Shiren, E.B.Tucker. Phys. Rev.Lett., 3, 81, 1959.
- [3] P.H.Carr, M.P.W.Strandberg. J.Phys. Chem. Solids, 23, 923, 1962.
- [4] A.L.Taylor, G.W.Farnell. Canad. J.Phys., 42, 595, 1964.
- [5] M.I.Grace, R.F.Kedzie, M.Kegtigian, A.B.Smith. Appl. Phys. Lett., 9, 155, 1966.
- [6] G.Burns, D.F.O'Kane, R.S.Title. Phys. Lett., 23, 56, 1966.
- [7] J.H.Van Vleck. Phys. Rev., 57, 426, 1940.
- [8] W.I.Dobrov. Phys.Rev., 134, 734, 1964.
- [9] У.Х.Копвиллем, В.А.Голенищев-Кутузов, В.Р.Нагибаров. ФТТ, 6, 1251, 1964.