

## ОБ АКУСТИЧЕСКОЙ ПРИРОДЕ МИКРОВОЛНОВОГО ЭХА В СИЛИКАТНЫХ СТЕКЛАХ

Б.П.Смоляков, Н.К.Соловаров<sup>1)</sup>

Казанский филиал Московского энергетического института  
420066 Казань, Россия

Поступила в редакцию 17 июля 1998 г.  
После переработки 28 октября 1998 г.

На основе результатов по зависимости интенсивности микроволнового эха в силикатных стеклах с парамагнитными примесями от магнитного поля построена модель формирования эха как суперпозиции сигналов акустического электронного спинового эха системы парамагнитных примесей и поляризационного эха ансамбля микрокристаллов кварца, содержащихся в стекле. Представление микрокристаллов в стекле в виде ансамбля акустических осцилляторов позволяет объяснить аномальную низкотемпературную теплоемкость стекол без привлечения модели локализованных двухуровневых туннельных центров.

PACS: 61.43.Fs, 72.50.+b, 72.55.+s

Низкотемпературные аномалии теплоемкости и теплопроводности диэлектрических стекол по сравнению с кристаллами традиционно объясняются присутствием в стеклах гипотетической системы туннельных двухуровневых центров с широким энергетическим спектром [1-4]. Физическая природа таких туннельных центров в бесприемных стеклах не установлена. Одним из экспериментальных проявлений туннельных двухуровневых систем считается наблюдение микроволнового эха в стеклах при низких температурах [5-9].

В настоящей работе сообщается об обнаружении сильной зависимости интенсивности микроволнового эха в стеклах с парамагнитными примесями от быстрых изменений напряженности внешнего магнитного поля. Этот результат и обнаруженная ранее [10,11], но не получившая объяснения, зависимость интенсивности эха в таких стеклах от стационарного магнитного поля качественно объясняются на основе представления о суперпозиции сигналов акустического электронного спинового эха системы магнитных примесей и поляризационного эха акустической природы. При этом используется модель силикатного стекла в виде изотропного твердого тела, включающего ансамбль микрокристаллов кварца [12,13]. Представление микрокристаллов в виде ансамбля акустических осцилляторов позволяет объяснить аномальную (линейную по температуре) низкотемпературную теплоемкость стекол без привлечения модели гипотетических двухуровневых туннельных центров.

Силикатные (алюмосиликатные и боросиликатные) стекла с парамагнитными примесями группы железа (Fe, Ni, Cu – 8 образцов с концентрациями  $c \sim 0.1 \div 1.6$  вес.%) и редких земель (Nd, Ce – 4 образца,  $c \sim 0.1 \div 0.5$  вес.%), а также бесприемные силикатные стекла (10 образцов) и кварцевые стекла (3 образца) изучались методом, аналогичным наблюдению двухимпульсного поляризационного эха в кристаллах пьезосегнетоэлектриков [14–16]. Измерения проводились при температурах 4.2 и 1.8 К. Серия парных СВЧ импульсов с частотой заполнения  $\approx 9.6$  ГГц, длительностью  $\sim 30 \div 40$  нс, интервалом между импульсами  $\tau$  от 50 нс до 0.1 мс, частотой

<sup>1)</sup> e-mail: solovar@dionis.kfti.kcn.ru

повторения до 1 кГц и плавно регулируемой импульсной мощностью до 5 кВт подавалась в низкодобротный объемный резонатор с размещенным в пучности электрической компоненты СВЧ поля резонатора образцом. Через интервал  $\tau$  после воздействия на образец пары импульсов образец генерировал электромагнитный сигнал эха, который регистрировался широкополосным приемным устройством с пороговой чувствительностью  $\sim 10^{-13}$  Вт. Далее сигнал стробировался, подавался на накопительное устройство и записывался на двухкоординатном самописце. Исследовалась зависимость интенсивности сигналов эха от напряженности внешнего магнитного поля ( $I(H)$ ) до  $H \approx 1.2$  Тл.

Сформулируем характерные свойства эха в стеклах, объединяя опубликованные ранее [10,11,2] и новые экспериментальные данные.

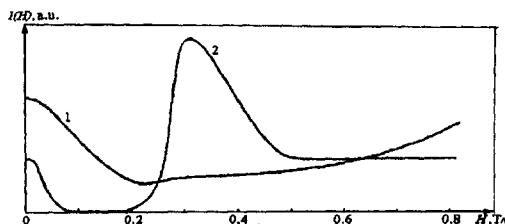


Рис.1. Зависимость интенсивности эха ( $I(H)$ ) в силикатных стеклах с примесью: 1) Nd ( $c = 0.5$  вес.%), 2) Sr ( $c = 0.2$  вес.%) от магнитного поля ( $H$ );  $T = 1.8$  К

1. При  $H = 0$  сигналы микроволнового эха наблюдались во всех исследованных образцах силикатных стекол. В беспримесных стеклах эхо, как правило, наблюдалось только при 1.8 К. С увеличением концентрации примеси интенсивность эха возрастала. Для образцов одного объема и одинаковой концентрации различных примесей интенсивность сигналов эха при  $H = 0$  была одного порядка. Характерная интенсивность эха при  $H = 0$  для образца объемом  $0.5$  см<sup>3</sup> с концентрацией примеси  $\sim 0.5$  вес.% была  $\sim 10^{-10}$  Вт. В образцах кварцевых стекол эхо при гелиевых температурах нами не наблюдалось, однако известно [7–9, 17], что оно наблюдается при сверхнизких ( $\sim$  мК) температурах.

2. Зависимость  $I(H)$  наблюдалась только для стекол с парамагнитными примесями. В беспримесных стеклах  $I(H) = \text{const} = I(0)$ . Для ряда образцов с малой концентрацией примеси или малой константой спин-фононной связи наблюдался широкий по магнитному полю минимум  $I(H)$  (рис.1, кривая 1). Для образцов с относительно большими  $c$  или большой константой спин-фононной связи наблюдались два максимума  $I(H)$  при  $H = 0$  и  $H = H_m$  с различной относительной интенсивностью максимумов, причем интенсивность второго максимума  $I(H_m)$  коррелировала с  $c$  (рис.1, кривая 2). На рис.1, кривая 2 отсутствию сигнала соответствуют интенсивности эха ниже пороговой чувствительности приемного устройства. Произвольность единиц интенсивности отражает невозможность сравнивать сигналы различных (по форме и положению в резонаторе) образцов. С понижением температуры  $I(H)$  увеличивается при любых  $H$ . Положение максимума  $I(H)$  по полю зависело от мощности возбуждающих импульсов и интервала между ними и варьировалось в пределах  $\pm 0.03$  Тл. Сдвиг образца в резонаторе изменял относительную интенсивность максимумов.

3. Времена релаксации  $T_2$  в поле  $H = 0$  и  $H \neq 0$  различны, и, как правило,  $T_2$  увеличивается при  $H \neq 0$ .

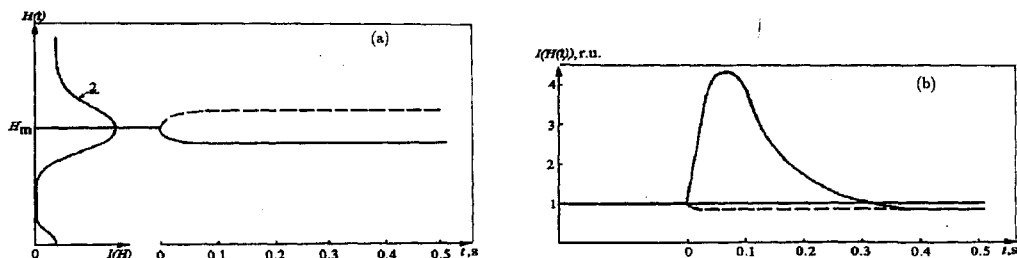


Рис.2. Зависимость интенсивности эха от быстрых изменений магнитного поля ( $\Delta H$ ). Сплошная линия –  $\Delta H < 0$ , штриховая –  $\Delta H > 0$ ;  $T = 1.8 \text{ K}$ : а – зависимость напряженности магнитного поля от времени: кривая 2 соответствует экспериментальной кривой 2 рис.1; б – зависимость интенсивности эха от времени:  $t = 0$  соответствует началу изменения магнитного поля

4. При быстром уменьшении магнитного поля (за время  $\approx 0.1 \div 0.5$  с, определяемое инерционностью электромагнита) на  $\Delta H \approx 0.05 \text{ Тл}$  в окрестности  $H_m$  интенсивность эха увеличивалась в среднем в  $3 \div 5$  раз (до 10 раз в образцах с высокой концентрацией примеси). С прекращением изменения  $H$  интенсивность эха уменьшалась и устанавливалась на уровне  $I(H_0 - \Delta H)$  для стационарного значения поля ( $H_0$  – начальное значение магнитного поля в окрестности широкой колоколообразной линии с максимумом при  $H_m$ ). Характерная временная зависимость изменения интенсивности эха при быстром изменении магнитного поля показана на рис.2. В левой части (рис.2а) приведена зависимость  $I(H)$  для боросиликатного стекла с примесью Cr, тождественная (рис.1, кривая 2). В правой части того же рисунка показана временная зависимость напряженности внешнего магнитного поля, а на рис.2б иллюстрируется соответствующее временное изменение интенсивности эха. До начала изменения поля, принятого за начало отсчета времени, интенсивность эха постоянна. При быстром уменьшении поля интенсивность эха на короткое время возрастает (сплошная линия), а при увеличении изменяется очень мало (штриховая линия).

Перечисленные свойства эха качественно описываются в рамках следующей модели.

1. Силикатное стекло представляется в виде изотропного твердого тела, включающего микрокристаллы кварца [12,13], которые обладают свойствами низкодобротных акустических резонаторов и имеют широкий спектр собственных частот.

2. Действие электрической компоненты первого СВЧ импульса на частоте  $\omega$  за счет обратного пьезоэффекта возбуждает в каждом микрокристалле импульс акустической волны, который быстро обратимо расфазирован вследствие низкой добротности микрокристаллов.

3. Во время действия второго СВЧ импульса с частотой  $\omega$  в каждом микрокристалле одновременно с акустической волной на частоте  $\omega$  вследствие нелинейности микрокристалла генерируется вторая гармоника акустического и (вследствие прямого пьезоэффекта) электрического поля с частотой  $2\omega$ .

4. Вторая гармоника электрического поля во время действия второго импульса за счет механизма Томпсона–Куэита [18] обращает существующую в каждом микрокристалле расфазированную акустическую волну от первого импульса. Таким образом, в каждом микрокристалле генерируется сигнал поляризационного эха, как это происходит в макроскопических монокристаллах пьезоэлектриков [6].

5. За счет взаимодействия акустических импульсов с электронной спин-системой парамагнитных примесей в условиях акустического парамагнитного резонанса в каждом микрокристалле формируется сигнал акустического электронного спинового эха [19].

6. Наблюдаемое микроволновое эхо в силикатных стеклах с парамагнитными примесями представляет собой суперпозицию сигналов поляризационного эха и акустического электронного спинового эха. Фазы акустических и, связанных с ними электрических полей поляризационного эха и акустического электронного спинового эха отличаются на  $\pi$ .

7. Микроволновое эхо в беспримесных силикатных стеклах представляет собой аналог поляризационного эха в пьезоэлектрических порошках, однако механизм формирования эха отличен от обычно предполагаемого в порошках [6, 20, 21] и соответствует механизму Томпсона – Куэита в монокристаллах. Из известных механизмов формирования эха только механизм Томпсона – Куэита обращения волнового фронта акустической волны приводит к формированию эха с фазой, отличающейся на  $\pi$  от фазы акустического электронного спинового эха, формируемого по механизму Хана [19]. При  $H = 0$  вкладом акустического электронного спинового эха в примесных стеклах можно пренебречь вследствие отсутствия резонанса, и сигнал эха представляет собой только сигнал поляризационного эха, вклад которого не изменяется при изменении магнитного поля. Вклад акустического электронного спинового эха растет при увеличении магнитного поля, достигая максимума в условиях акустического электронного парамагнитного резонанса. Вследствие противофазности вкладов по мере роста магнитного поля происходит уменьшение суммарного детектируемого сигнала. Минимум достигает нуля, если вклад в эхо от спин-системы примесей становится равным вкладу в эхо от микрокристаллов кварца. С дальнейшим увеличением  $H$  интенсивность  $I(H)$  определяется относительной величиной вкладов в эхо различной природы и существующий максимум  $I(H_m)$  обусловлен в основном вкладом широкого по магнитному полю [19] акустического электронного спинового эха.

8. Последний факт позволяет качественно объяснить динамическое поведение интенсивности эха (рис.2) как следствие магнитного охлаждения стекла. При быстром уменьшении  $H$  электронная спин-система примесей оказывается переохлажденной и отнимает тепловую энергию стекла. Теплоемкость стекла при гелиевых температурах относительно мала по сравнению с кристаллами [2–4], поэтому охлаждение может быть эффективным. К тому же, вследствие относительно малой теплопроводности стекол при низких температурах обмен энергией с гелиевой ванной (термостатом) затруднен. Наблюдаемое 3 ÷ 5-кратное увеличение интенсивности эха при температуре термостата  $\approx 1.8$  К соответствует охлаждению стекла до  $\approx 0.54 \div 0.18$  К.

9. Принципиальным пунктом объяснения свойств эха является замена в модели стекла [1-4] ансамбля гипотетических двухуровневых туннельных центров ансамблем микрокристаллов кварца — акустических микрорезонаторов. Возникает вопрос о возможности объяснения в такой модели аномалий теплоемкости стекол. Представляя микрокристалл как акустический осциллятор с собственной частотой  $\omega$  и записав в соответствии с моделью Эйнштейна выражение теплоемкости системы

осцилляторов [22], легко получить:

$$C = \int_0^{\infty} n(E) \frac{d}{dT} \left( \frac{E}{\exp(E/kT) - 1} \right) dE \sim \bar{n}T,$$

где  $E = \hbar\omega$ ,  $k$  – постоянная Больцмана,  $T$  – температура,  $n(E)$  – плотность распределения микрокристаллов по собственным энергиям (частотам), полагаемая плавной функцией (аналогично модели [1-4]), заменяемая постоянной величиной  $\bar{n}$  – некоторым средним значением. Следовательно, существование ансамбля микрокристаллов – осцилляторов с широким плавным распределением собственных частот обеспечивает характерный для стекол линейный по температуре вклад в низкотемпературную теплоемкость.

Авторы признательны В.З.Малкину за полезные обсуждения. Работа выполнена при поддержке Миннауки России и Академии наук Татарстана (грант # 04-01/97).

1. R.C.Zeller and R.O.Pohl., Phys. Rev. **В4**, 2029 (1971).
2. В.П.Смоляков, Е.П.Хаймович, УФН **136**, 317 (1982).
3. В.И.Гольданский, Л.И.Трахтенберг, В.Н.Флеров, *Туннельные явления в химической физике*, М.: Наука, 1986.
4. М.И.Клингер, УФН **152**, 523 (1987).
5. У.Х.Копвиллем, В.И.Осипов, Б.П.Смоляков, Р.З.Шарипов, УФН **105**, 767 (1971).
6. У.Х.Копвиллем, С.В.Пранц, *Поляризационное эхо*, М.: Наука, 1985.
7. В.Golding and J.E.Graebner, Phys. Rev. Lett. **37**, 852 (1976).
8. J.E.Graebner and В.Golding, Phys. Rev. **В19**, 964 (1978).
9. G.Baier and M.v.Schickfus, Phys. Rev. **В38**, 9952 (1988-I).
10. Б.П.Смоляков, Е.П.Хаймович, Письма в ЖЭТФ **24**, 454 (1976).
11. Б.П.Смоляков, Е.П.Хаймович, ФТТ **22**, 1536 (1980).
12. А.А.Лёбедев, *Труды ГОИ*, **2**, N10, 1 (1921).
13. К.К.Шварц, *Физика оптической записи в диэлектриках и полупроводниках*, Рига, Зинатне, 1986.
14. У.Х.Копвиллем, В.П.Смоляков, Р.З.Шарипов, Письма в ЖЭТФ **13**, 558 (1971).
15. А.И.Валидов, Б.П.Смоляков, С.Л.Царевский, ЖЭТФ **99**, 1302 (1991).
16. А.И.Валидов, Р.А.Демин, Б.П.Смоляков, С.Л.Царевский, ЖЭТФ **106**, 217 (1994).
17. Ch.Enss, R.Weiss, S.Ludvig, and S.Hunclinger, Chech. J. Phys. **46**, Part S6, 3287 (1996).
18. R.V.Thompson and C.F.Quate, J. Appl. Phys. **42**, 907 (1971).
19. В.А.Голенищев-Кутузов, В.В.Самарцев, Н.К.Соловаров, Б.М.Хабибуллин, *Магнитная квантовая акустика*, М.: Наука, 1977.
20. В.М.Березов, Я.Я.Асадуллин, В.Д.Корепанов, В.С.Романов, ЖЭТФ **69**, 1674 (1975).
21. K.Fossheim, K.Kajimura, T.G.Kazuaka et al., Phys. Rev. **В17**, 964 (1978).
22. Ч.Киттель, *Введение в физику твердого тела*, М.: Наука, 1978.