УДК 539.21 : 539.12.04; 548 : 539,12.0,4

ЭЛЕКТРИЧЕСКОЕ ДИПОЛЬНОЕ ЭХО ДВУХУРОВНЕВЫХ СИСТЕМ В ДИЭЛЕКТРИЧЕСКИХ СТЕКЛАХ

В. С. Кузьмин, А. П. Сайко

Теоретически обсуждено влияние асимметрии потенциала двухуровневых систем в диэлектрических стеклах на формирование сигналов когерентного излучения в виде электрического эха при сверхнизких температурах. Установлено, что учет асимметрии потенциала приводит к зависящей от амплитуды переменного электрического поля F_0 перенормировке дипольного момента двухуровневых систем. Показано, что при этом становится возможной генерация электрического эха на n-й гармонике ($n \geqslant 2$), вероятность которой увеличивается при возрастании F_0, в то время как вероятность возбуждения эха на первой гармонике уменьшается. Получено хорошее соответствие теоретических оценок и экспериментальных результатов по генерации первичного и стимулированного эха на первой гармонике в кварце. На примере этого материала обсуждена возможность возбуждения эха на второй гармонике.

Одним из убедительных обоснований модели двухуровневых систем (ДУС) [1, 2] является обнаружение когерентных сигналов типа эха в диэлектрических стеклах при импульсном возбуждении электрическими и звуковыми полями [3–5] при сверхнизких температурах. Теоретическое описание сигналов эха в стеклах обычно проводится в рамках псевдоспинового формализма на основе гамильтониана [5]

$$\mathscr{H} = ES_z + \frac{\Delta}{E}(\mathrm{pe})\,F(t)\,S_z + \frac{\Delta_0}{E}(\mathrm{pe})\,F(t)\,S_x, \tag{1}$$

полученного из гамильтониана [6]

$$\mathscr{H} = \Delta S_z + (\mathrm{pe})\,F(t)\,S_z - \Delta_0 S_x \tag{2}$$

при помощи преобразования

$$S_x \to S_x\Delta_0/E + S_z\Delta/E,$$
$$S_z \to S_x\Delta/E - S_z\Delta_0/E.$$

В (1) и (2) через Δ и Δ_0 обозначены параметры асимметрии двухъямного потенциала и туннелирования соответственно; p — электрический дипольный момент ДУС; e — поляризация внешнего резонансного поля; $E=(\Delta^2+\Delta_0^2)^{1/2}$; S_x, S_z — спиновые операторы; $F(t)=F_0 \cos \omega t$.

В повернутой системе координат (2) похож на гамильтониан, описывающий поведение спина ($S=1/2$) в постоянном H_0 и переменном H_1 магнитных полях, направленных под углом $\vartheta \neq \pi/2$ друг к другу [7],

$$\mathscr{H} = g_{\parallel}\beta H_0 S_z + g_{\parallel}\beta H_1 \cos\vartheta \cos\omega t S_z + g_{\perp}\beta H_1 \sin\vartheta \cos\omega t S_x, \tag{3}$$

где $g_{\parallel}$ и $g_{\perp}$ — продольная и поперечная компоненты g-фактора, β — магнетон Бора. Как видно (3), кроме поперечного взаимодействия, отвечающего за переходы между уровнями, содержит еще «продольное» взаимодействие, обусловливающее модуляцию энергетического расщепления. После применения унитарного преобразования

$$R = \exp\left[i\,(g_{\parallel}\beta H_1 \cos\vartheta/\omega)\sin\omega t S_z\right]$$

в приближении вращающейся волны эффективный гамильтониан будет

$$\mathscr{H}_{\text{эф}} = R\mathscr{H}R^{-} - iR\,\frac{\partial R^{-}}{\partial t} = g_{\parallel}\beta H_0 S_z + g_{\perp}\beta H_1 \sin\vartheta\,[S^{+}\exp(-i(\omega t - \varphi(t))) + \text{э. с.}],$$

где $\varphi(t) = g_{\parallel}\beta H_1 \cos\vartheta \sin\omega t/\omega$.

Таким образом, в системе координат, повернутой относительно оси oz на угол $\varphi(t)$, на систему спинов воздействует фазово-модулированное поле, индекс модуляции которого $m = g_{\parallel}\beta H_1 \cos\vartheta/\omega$ зависит от его амплитуды. Из теории колебаний известно, что спектр фазово-модулированного колебания состоит из бесконечного числа боковых составляющих частоты $\omega_n = n\omega$, амплитуды которых пропорциональны $\sim \mathcal{J}_n(m)\, g_{\perp}\beta H_1 \sin\vartheta$, где $\mathcal{J}_n(m)$ — функция Бесселя n-го порядка. Если ω меньше $\omega_0 = g_{\parallel}\beta H_0$ в n раз, то в резонанс попадает лишь n-я боковая составляющая, что и обусловливает возбуждение системы и последующее появление различных нелинейных эффектов.

В ЭПР такой случай обсуждался теоретически и экспериментально на E'_1-центрах в кварце, где наблюдались сигналы нутации [8, 9], индукции и эха [10, 11] на второй гармонике.

Имея в виду отмеченную выше аналогию гамильтонианов (1) и (3), представляет интерес распространить эти идеи на поведение ДУС в стеклах во внешних импульсных переменных полях с целью объяснения наблюдающихся в них сигналов электрического дипольного эха (с учетом, конечно, специфики стекла как неупорядоченной среды). В имеющихся теоретических работах [5] по расчету дипольного эха в стеклах обычно пренебрегают асимметрией двухъямного потенциала, что оправдано при небольших амплитудах внешнего поля ($(\text{pe})F_0/\omega \ll 1$), когда частота Раби мала по сравнению с частотой перехода. В общем же случае учет асимметрии может привести к существованию в стеклах отмеченных выше нелинейных явлений, если рассматривать ДУС в качестве активных «примесей». Для некогерентного режима учет асимметрии был сделан в [12], где обсуждалось его влияние на резонансное (электромагнитное, акустическое) поглощение в стеклах.

В настоящей работе мы покажем, что учет асимметрии двухъямного потенциала в задаче о возбуждении когерентных откликов типа эха в диэлектрических стеклах не только объясняет экспериментальные данные по генерации эха на первой гармонике, но и позволяет предсказать ряд новых особенностей, которые вполне можно обнаружить экспериментально. Для определенности в дальнейшем речь будет идти об электрическом дипольном эхо.

Пусть совокупность ДУС, описываемая (1), подвергается воздействию двух импульсов электрического поля длительностью t_1 и t_2 и задержкой между ними τ, причем t_1, t_2 и τ меньше всех времен релаксации стекла (когерентный режим).

Для выделения возможных резонансных явлений применим к (1) унитарное преобразование вида [7]

$$R(t) = \left\{ i S_z \left[\omega(q+1)\,t + \frac{\Delta}{E}\, a \sin\omega t \right] \right\}, \quad a = \frac{(\text{pe})\,F_0}{\hbar\omega}, \tag{4}$$

которое эквивалентно переходу во вращающуюся с частотой $\omega(q+1)$ и осциллирующую по закону $\sin\omega t$ систему координат. После соответствующих преобразований приходим к гамильтониану

$$H_R = [E - \omega(q+1)]\, S_z + \frac{\Delta_0}{E}\,(\text{pe})\,F_0 \sum_{n=-\infty}^{\infty} \mathcal{J}_n\!\left(a\,\frac{\Delta}{E}\right)[S_{+}e^{i(n+q)\omega t} + \text{э. с.}], \tag{5}$$

из которого видно, что взаимодействие псевдоспина с импульсным полем частоты ω в системе координат (4) свелось к «поперечному» взаимодействию с полями, частоты которых кратны ω. Если ширина линии $\sigma < \omega$, то в резонансе будет находиться лишь та гармоника, частота которой $\omega(q+1) \simeq E$, а влиянием остальных можно пренебречь (секулярное приближение). Тогда (5) будет

$$H_R = [E - \omega(q+1)]\, S_z + \frac{\Delta_0}{E}\,(\mathrm{pe})\,\mathcal{J}_{-q}\left(\frac{\Delta}{E}\right) F_0 S_x. \tag{6}$$

Гамильтониан (6) становится тождественным гамильтониану, применяющемуся при расчетах дипольного эха в стеклах [5], но с перенормированным дипольным моментом $p \to p\mathcal{J}_{-q}\left(a\,\frac{\Delta}{E}\right)$, $\mathcal{J}_{-q}\left(a\,\frac{\Delta}{E}\right)$ — функция Бесселя q-го порядка. Аргументом функции Бесселя является отношение $\Delta\,(\mathrm{pe})F_0/\hbar\omega E$, зависящее от параметра асимметрии и амплитуды поля.

Применяя далее известную схему вычислений сигналов эха [13] с помощью (6) при $F_0 \neq 0$ (во время действия импульсов) и $F_0 = 0$ (в промежутке между импульсами и после окончания второго импульса) для v-компоненты поляризованности на $(q+1)$-й гармонике получим

$$v^{(q+1)}(t) = v_0^{(q+1)} \sin\vartheta_1 \sin^2\frac{\vartheta_2}{2} \cos\delta\omega\,(t - 2\tau)\cos\left(a\,\frac{\Delta}{E}\,\varphi\right), \tag{7}$$

$$\vartheta_{1,2} = \frac{\Delta_0}{E}\,\psi_{1,2}, \quad \psi_{1,2} = (pe)\,F_0 t_{1,2}\,\mathcal{J}_{-q}\left(a\,\frac{\Delta}{E}\right), \quad \delta\omega = E - \omega(q+1),$$

$$\varphi = \sin\omega(\tau + t_1 + t_2) + \sin\omega(\tau + t_1) - \sin\omega t_1$$

— набег фазы, возникший за счет учета «продольного» взаимодействия в (1).

Выражение (7) необходимо просуммировать по всем возможным значениям $\delta\omega$ и реализациям параметра $r = \Delta_0^2/E^2$, как это делается, например, при расчетах ультразвукового поглощения, теплоемкости и теплопроводности стекол при сверхнизких температурах [6, 14]. Согласно этим работам, соответствующая функция распределения имеет вид

$$\mathcal{F}(r) = \frac{1}{2}\,\mathcal{F} r^{-1}(1 - r)^{-\frac{1}{2}}, \quad \mathcal{F} + \mathrm{const}.$$

Выражая в (7) Δ_0/E и Δ/E через r и полагая, что контур неоднородно-уширенной линии описывается гауссианом, окончательно получим следующие выражения для амплитуды и интенсивности первичного эха

$$\langle v^{(q+1)}(2\tau)\rangle = v_0^{(q+1)} \int\limits_{r\,\min}^{1} \cos\left(\sqrt{1 - r}\,\frac{a\varphi}{3}\right) \sin\left(\frac{\sqrt{2}}{3}\,\psi_1\right) \sin^2\left(\frac{\sqrt{2}}{6}\,\psi_2\right) \mathcal{F}(r)\,dr, \tag{8}$$

$$\mathcal{J}^{(q+1)}(2\tau) = \mathcal{J}_0^{(q+1)} \int\limits_{r\,\min}^{1} \cos\left(\sqrt{1 - r}\,\frac{a\varphi}{3}\right) \sin^2\left(\frac{\sqrt{2}}{3}\,\psi_1\right) \sin^4\left(\frac{\sqrt{2}}{6}\,\psi_2\right) \mathcal{F}(r)\,dr. \tag{9}$$

Аналогичные выражения были получены нами и для стимулированного эха, однако из-за громоздкости соответствующих формул мы их в статье не приводим.

Анализ (8) и (9) показывает, что учет асимметрии потенциала ДУС приводит к возможности генерации эха на n-й гармонике, амплитуда и интенсивность которого зависят от значения аргумента функции Бесселя. При его увеличении (за счет возрастания F_0) вероятность многоквантового возбуждения эха повышается, а вероятность одноквантового — уменьшается. Следовательно, эхо на n-й гармонике желательно наблюдать при больших амплитудах переменного поля. Заметим, что «продольное» взаимодействие сказывается и на сигнал эха на первой гармонике ($q=0$), если, конечно, амплитуда поля не слишком мала. В экспериментах по дипольному эху в кварце [15], например F_0 варьировалась до 600 в/см, что соответствует аргументу функции Бесселя ~ 0.7, т. е. наблюдение сигналов эха на n-й гармонике вполне достижимо с экспериментальной точки зрения.

Анализ экспериментальных данных по возбуждению электрического эха в диэлектрических стеклах показывает, что не все особенности отклика поддаются теоретическому объяснению. Среди них можно упомянуть отсутствие переходящих через нуль осцилляций амплитуды эха при увеличении F_0 [4], хотя выражение (7) при $t=2\tau$, $t_1=t_2$ и $q=0$, $\Delta=0$ предсказывает переход через нуль. Численный расчет, проделанный нами по формуле (8) при $t=2\tau$, $q=0$, $t_1=t_2=0.9$ мс, $\omega=710$ Мгц [4] и различных значениях нижнего предела $r_{\min}$ (рис. 1), показал наличие двух максимумов в положительной области, что согласуется с экспериментом [4]. Оценка положения первого максимума обнаружила сдвиг $\langle v^{(1)}(2\tau)\rangle$ от положения $\vartheta=2\pi/3$, предсказываемого формулой (7) при $q=0$ и $\Delta=0$. Это позволило уточнить значение дипольного момента ДУС, которое оказалось равным ~ 6.3 Дебая вместо 5 Дебаев, полученным в [4]. Ход $\langle v^{(1)}(2\tau)\rangle$ очень чувствителен к значению $r_{\min}$ (рис. 1), причем величина первого максимума слабо зависит от $r_{\min}$, в то время как у второго максимума эта зависимость существенна. В своих расчетах мы ограничились значением $r_{\min}=0.001$, поскольку при дальнейшем уменьшении $r_{\min}$ вид $\langle v^{(1)}(2\tau)\rangle$ практически не меняется. Если иметь в виду связь $r_{\min}=\exp[-2(\lambda_{\max}-\lambda_{\min})]$ [14], то можно оценить разность между максимальным и минимальным значениями туннельного интеграла $\lambda_{\max}-\lambda_{\min}$.

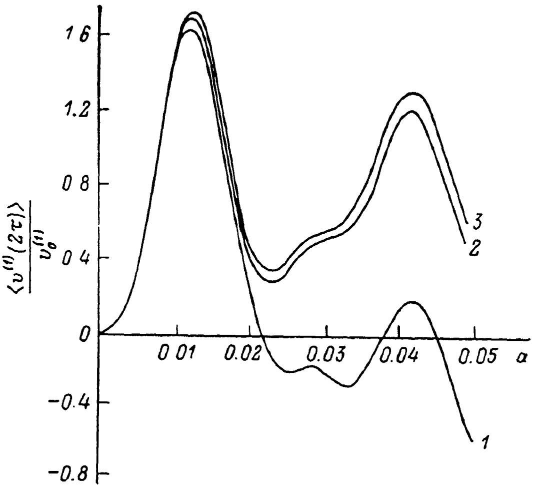

Рис. 1. Полевая зависимость амплитуды первичного электрического эха на первой гармонике при $r_{\min}=0.1$ (*1*), 0.01 (*2*), 0.001 (*3*).

Обратимся теперь к эксперименту [15], в котором изучались первичное и стимулированное электрическое эхо на первой гармонике ($q=0$) в кварце при температурах от 5 до 20 мК на частоте 360 Мгц. Исследование полевой и температурной зависимостей интенсивности эха показало, что в кварце наблюдаются сигналы от двух типов ДУС, которые отличаются величиной дипольного момента и концентрациями. Обработка полученных данных с помощью (1), но без учета «продольного» взаимодействия позволила авторам определить дипольные моменты обоих типов ДУС и их концентрацию, но не смогла объяснить полевой ход отклика (рис. 2). В рамках обычной теории трудно трактовать «плато» в полевом ходе отклика: должно наблюдаться два четко разделенных максимума, соответствующих двум типам ДУС с разными дипольными моментами. Проделанные нами численные расчеты по формуле

$$\mathcal{J}^{(1)}(2\tau)=\mathcal{J}_1^{(1)}(2\tau)+A\mathcal{J}_2^{(1)}(2\tau) \tag{10}$$

с учетом экспериментальных данных [15] для обоих типов ДУС $(pe)_1=0.1$ Дебая, $(pe)_2=5\cdot 10^{-3}$ Дебая, $t_2=2t_1=0.6$ мс $A=9$ (коэффициент, учитывающий различие в концентрациях двух типов ДУС) показали удовлетворительное соответствие с экспериментом (рис. 2). Расчеты стимулированного эха, проведенные по формуле, аналогичной (10), приведены на рис. 3. Худшее по сравнению с первичным эхо соответствие с экспериментом объясняется тем, что к моменту генерации стимулированного эха начинает действовать релаксация, приводящая к уменьшению сигнала. В наших же расчетах релаксация не учитывалась. Общим для обеих теоретических кривых является наличие осцилляций, которые по мере увеличения F_0 сглаживаются, приобретают вид «ряби» и затем исчезают совсем.

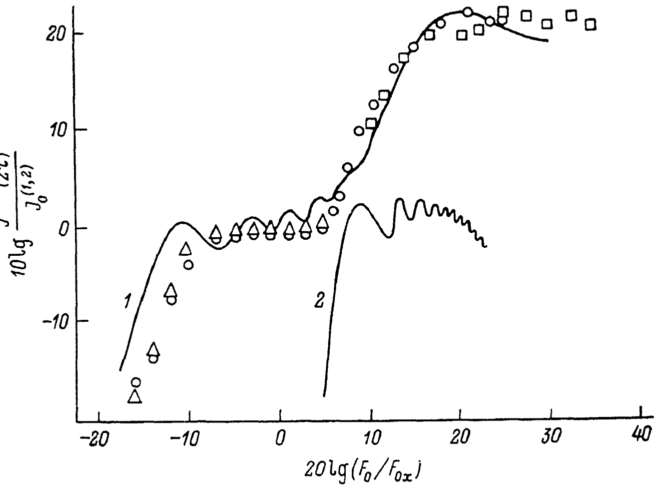

Рис. 2. Полевая зависимость интенсивности первичного электрического эха на первой (*1*) и второй (*2*) гармониках в кварце.

Кружочки, прямоугольники и треугольники — экспериментальные данные [15], сплошные линии — теоретический расчет.

Как уже нами упоминалось, роль «продольного» взаимодействия становится существенной при больших амплитудах переменного поля, т. е. при больших аргументах функции Бесселя. Из рис. 1 видно, что обоим

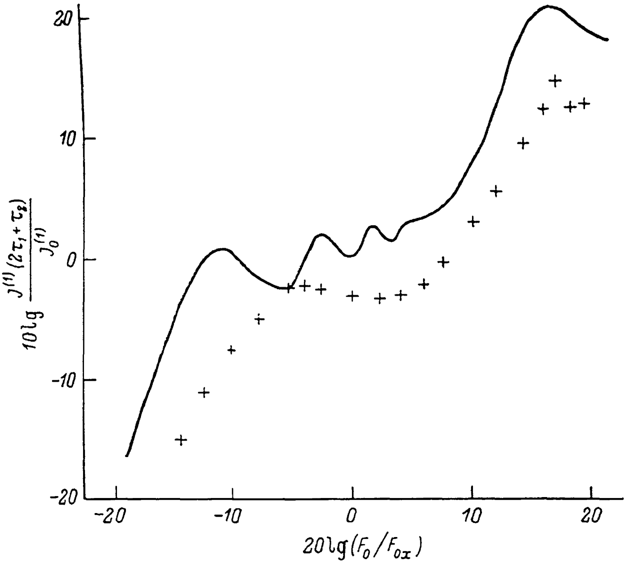

Рис. 3. Полевая зависимость интенсивности стимулированного электрического эха на первой гармонике в кварце.

Крестики — экспериментальные данные [15], сплошная линия — теоретический расчет, τ_1 (τ_2) — задержка между первым и вторым (вторым и третьим) импульсами.

максимумам соответствуют небольшие значения аргумента, так что наличие функции Бесселя в выражениях для площадей импульсов вряд ли в состоянии изменить положение максимума по сравнению со случаем $q=0$, $\Delta=0$. Поэтому наблюдающийся сдвиг максимума от положения $2\pi/3$ скорее всего обязан интегрированию по реализациям r. Во втором же случае (рис. 2) «продольное» взаимодействие сильнее влияет на интенсивность отклика, поскольку в эксперименте [1] использовались очень большие F_0. Далее представляет интерес обсудить возможность генерации эха на второй гармонике в условиях эксперимента [15]. Численные расчеты по формуле, аналогичной (10), но при $q=1$ (рис. 2), показывают, что данный отклик формируется при вполне достижимых в эксперименте амплитудах поля. Полевая зависимость $\mathcal{J}^{(2)}(2\tau)$, так же как и для одноквантового случая ($q=0$), испытывает осцилляции, постепенно затухающие по мере увеличения F_0. Обращает на себя внимание большая крутизна начального участка $\mathcal{J}^{(2)}(2\tau)$ по сравнению с $\mathcal{J}^{(1)}(2\tau)$. Если в выражении для амплитуды эха (8) разложить подынтегральную функцию по степеням (pe) F_0 и ограничиться первым членом разложения, то получим

$$\langle v^{(q+1)}(2\tau)\rangle = v_0^{(q+1)} \frac{[(\mathbf{pe})\ F_0]^{3(q+1)}}{\omega^{3q}}\ t_1 t_2^2 \int\limits_{r_{\min}}^{1} r^{3/2}(1-r)^{3/2 q}\ \mathcal{P}(r)\, dr.$$

Видно, что амплитуда эха на первой гармонике ($q=0$) пропорциональна кубической степени поля, в то время как на второй гармонике ($q=1$) — шестой степени поля. Этим и объясняется различная крутизна начальных участков $\mathcal{J}^{(2)}(2\tau)$ и $\mathcal{J}^{(1)}(2\tau)$.

Физически возникновение сигналов эха на n-й гармонике в диэлектрических стеклах можно объяснить следующим образом. Внешнее электрическое поле частоты $\omega < E$ в (1) наряду с возбуждением квантового перехода («поперечная» компонента) вызывает модуляцию энергетического расщепления ДУС («продольная» компонента). Спектр возбуждения в результате суперпозиции этих компонент содержит гармоники на кратных ω частотах, вследствие чего одна из гармоник может попасть в резонанс ($n\omega \simeq E$). В процессе такого возбуждения ДУС участвует один «поперечный» и q «продольных» фотонов, суммарная частота которых $\omega\,(q+1) \simeq E$, т. е. реализуется ($q+1$)-фотонный параметрический резонанс [16]. Возбужденная таким образом система генерирует сигнал эха на частоте $\omega\,(q+1)$.

Таким образом, учет асимметрии двухъямного потенциала в задаче о возбуждении когерентного излучения дипольного электрического эха в диэлектрических стеклах приводит к возможности генерации отклика на кратных частоте возбуждения гармониках. Полученные в настоящей работе результаты можно обобщить и на случай фононного эха в стеклах при соответствующей замене параметров исходного гамильтониана.

Выражаем благодарность М. Г. Смольговской за помощь в проведении численных расчетов.

Литература

[1] *Anderson P. W., Halperin B. I., Varma C. M.* Phil. Mag., 1972, vol. 25, N 1, p. 1—9.
[2] *Phillips W. A.* J. Low Temp. Phys., 1972, vol. 7, p. 351—358.
[3] *Graebner J. E., Golding B.* Phys. Rev., 1979, vol. 19, N 3, p. 964—973.
[4] *Schickfus M. V., Golding B., Arnold W., Hunklinger S.* J. Phys., 1978, Colloq. C 6, Suppl. N 8, p. 959—960; *Piche L.* J. Phys., 1978, Colloq. C 6, Suppl. N 8, vol. 39, p. 1545—1552.
[5] *Смоляков Б. П., Хаймович Е. П.* УФН, 1982, т. 136, № 2, с. 317—343.
[6] *Jäckle J.* Z. Phys., 1972, Bd 257, N 4, S. 212—223.
[7] *Pegg D. T.* J. Phys. B, 1973, vol. 6, № 2, p. 241—245; *Зверев В. В., Показаньев В. Г.* Опт. и спектроск., 1973, т. 35, № 3, с. 564—566.
[8] *Boscaino R., Gelardi F. M., Messina G.* Phys. Rev. A, 1986, vol. 33, N 5, p. 3076—3082.
[9] *Кузьмин В. С., Яшин А. Н.* Опт. и спектроскоп., 1987, т. 62, № 6, с. 1312—1314.
[10] *Boscaino R., Gelardi F. M., Messina G.* Phys. Rev. A, 1983, vol. 28, N 1, p. 495—497; Phys. Lett. A, 1983, vol. 97, N 9, p. 413—416.
[11] *Kusmin V. S., Sayko A. P.* Springer Series in Solid State Sci., Berlin: Heidelberg, Springer Verlag, 1984, vol. 51, p. 455—456; *Кузьмин В. С., Яшин А. Н.* ЖПС, 1987, т. 46, № 5, с. 835—840.
[12] *Гальперин Ю. М.* ФТТ, 1983, т. 25, № 9, с. 2747—2754; Laikthman B. D. Phys. Rev. B, 1984, vol. 29, N 9, p. 3601—3606.
[13] *Маныкин Э. А., Самарцев В. В.* Оптическая эхо-спектроскопия. М.: Наука, 1984. 270 с.

[14] *Bhattacharya A.* Contemp. Phys., 1981, vol. 22, N 1, p. 117—127.
[15] *Bernard L., Saint-Paul M., Joffrin J.* J. Phys. Lett., 1979, vol. 40, N 22, p. 593—597; J. Low Temp. Phys., 1982, vol. 49, N 3, 4, p. 195—212.
[16] *Александров Е. Б., Константинов О. В., Перель В. И., Ходовой В. А.* ЖЭТФ, 1963, т. 45, № 3(9), с. 503—509; *Ходовой В. А.* ЖЭТФ, 1964, т. 46, № 1, с. 331—338.

Институт физики твердого тела
и полупроводников АН БССР
Минск

Поступило в Редакцию
22 июня 1987 г.
В окончательной редакции
16 ноября 1987 г.