АКУСТИЧЕСКИЙ ЖУРНАЛ, 1995, том 41, № 1, с. 59 - 66

УДК 534;535.2;8

ФОРМИРОВАНИЕ ФОНОННОГО ЭХА В СМЕШАННЫХ КРИСТАЛЛАХ В УСЛОВИЯХ СИЛЬНОГО НЕОДНОРОДНОГО УШИРЕНИЯ

© 1995 г. Ф. С. Вагапова, Р. В. Сабурова

Витебское отделение Института физики твердого тела и полупроводников АН Беларуси
210023 Витебск, пр. Людвикова, 13

Поступила в редакцию 15.03.94 г.

Построена теория микроволнового фононного эха в смешанных кристаллах типа $(KBr)_{1-x}(CN)_x$, возбуждаемого длинными акустическими импульсами. Появление эха связано с туннелирующими ионами CN^-, которые рассматриваются как аналоги двухуровневых системы (ДУС) в стеклах при низких температурах. В спектре ДУС, помимо затравочной асимметрии двухъямного потенциала, использована асимметрия взаимодействия, обусловленная упругими диполь-дипольными взаимодействиями ДУС, с некоторой функцией распределения. При расчете учтены концентрационно-зависящая плотность состояний ДУС, разброс частот туннельных расщеплений, другие функции распределения стекольных параметров вещества. Найдены новые сигналы, обусловленные асимметрией потенциала ДУС с необычными условиями пространственного синхронизма. Методами аналитического и численного интегрирования рассчитаны интенсивности и форма сигналов эха. Обнаружены эффекты запаздывания откликов. Предложен эксперимент.

Исследование природы аморфного состояния вещества на микроскопическом уровне является одной из фундаментальных проблем физики конденсированного состояния вещества. Универсальные тепловые, акустические и диэлектрические свойства многих аморфных тел при низких температурах ($T \leq 1$K) описываются феноменологической моделью двухуровневых систем (ДУС) [1, 2]. Предполагается, что ДУС является характеристикой "стеклообразного" состояния вещества. Происхождение ДУС точно не известно. Эффективными методами изучения "стекольных" свойств являются методы типа спинового эха [3, 4]. Ранее для теоретического и экспериментального исследований эхо-явлений использовалась обычная модель ДУС в структурных стеклах [1, 2]. Использование этой модели в других аморфных веществах в последнее время стало подвергаться сомнению ввиду неучета диполь-дипольного взаимодействия ДУС [5]. В работе [6] сообщалось о наблюдении диэлектрического эха в смешанном кристалле $(KBr)_{1-x}(CN)_x$ для концентраций $x = 0.0034$, 0.03, 0.2, 0.5 и 0.7 на частоте 0.8 ГГц и при температуре ~0.01 К. Показано, что при $x \approx 0.5$ скорости дефазировки сравнимы со скоростями, наблюдаемыми в структурных стеклах.

В данной работе мы предлагаем эксперимент: фононное эхо в смешанном кристалле $(KBr)_{1-x}(CN)_x$, возбуждаемое двумя длинными акустическими импульсами. Хотя вещество $(KBr)_{1-x}(CN)_x$ является кристаллом, оно разупорядочено, ионы CN^- и Br^- хаотично распределены в пределе анионной подрешетки. Только небольшая часть ($\sim 10^{-5}$) x ионов CN^- при температурах ниже 1 К, претерпевающая переориентацию через туннелирование, вызывает "стеклоподобные" возбуждения в кристалле. Ионы CN^- в смешанном кристалле являются аналогом ДУС в стеклах, обладают большим упругим дипольным моментом и небольшим постоянным электрическим моментом. При температурах менее 1 К ионы CN^- при исследуемых в [6] концентрациях x могут находиться в различных фазах. До концентрации $x \approx 0.56$ примеси CN^- находятся в фазе ориентационного стекла и электродипольного стекла. Для $x \gtrsim 0.56$ наблюдаются упругоупорядоченная и электродипольно-разупорядоченная фазы; антисегнетоэлектрическая фаза появляется при высоких концентрациях [7]. В отличие от структурных стекол, концентрация туннелирующих частиц в смешанном кристалле может изменяться в широких пределах. При малых x ионы CN^- слабо взаимодействуют между собой, с ростом x (от $x = 0.03$ до $x = 0.8$) взаимодействия между CN^- уширяют распределения величин (аналогично стеклу). Полагаем, что ионы CN^- находятся в ассиметричных двухъямных потенциалах и обладают локализованными туннельными состояниями. При расчете мы использовали модифицированную туннельную модель [5], учитывая в спектре ДУС диполь-дипольное взаимодействие. Мы рассчитали интенсивности сигналов фононного эха, используя (в численном расчете) функции распределения следующих параметров: туннельный параметр, затравочная асимметрия двухъямного потенциала, асимметрия взаимодействия между ДУС, параметр разброса частот туннельных расщеплений. Найдены форма эха, времена появления, ориентационная зависимость для основных и "дополнительных" сигналов

эха при различных амплитудах и длительностях импульсов.

Гамильтониан ДУС запишем в виде

$$\mathcal{H}_{\text{ДУС}} = \frac{1}{2}\begin{pmatrix} \Delta & -\Delta_0 \\ -\Delta_0 & \Delta \end{pmatrix}, \quad (1)$$

где параметр асимметрии Δ равен $\Delta = \varepsilon + \zeta(x)$, причем ε – затравочная асимметрия, обусловленная разностью энергии между локализованными состояниями [1], $\zeta(x)$ – асимметрия взаимодействия, обусловленная упругим диполь-дипольным взаимодействием между ДУС [5], т.е. $\zeta(x)$ – разность в упругой энергии между двумя возможными конфигурациями туннельного состояния.

Гамильтониан взаимодействия ДУС с фононами имеет вид [8]

$$\mathcal{H}_{ph} = G_{ik}U_{ik}^{ph}\begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}, \quad (2)$$

G_{ik} – тензор деформационного потенциала ДУС, U_{ik}^{ph} – тензор деформации в месте расположения ДУС. Гамильтониан взаимодействия ДУС с акустическим импульсом длительности τ_γ ($t = \tau_\gamma$; $\gamma = 1, 2$) описывается выражением

$$\mathcal{H}_\gamma(t) = G_\alpha U_{ik}^{ak}(t) = \\ = G_\alpha u_0 \cos(\omega t - \mathbf{k}_\gamma \mathbf{r})\left(\frac{\Delta_0}{E}\sigma_x + \frac{\Delta}{E}\sigma_z\right), \quad (3)$$

где σ_x, σ_z – матрицы Паули, $E = (\Delta_0^2 + \Delta^2)^{1/2} = [\Delta_0^2 + (\varepsilon + \zeta(x))^2]^{1/2}$, G_α – величина упругой связи ДУС с деформацией u_0; $\alpha = l, t$ – индексы, характеризующие продольную и поперечную акустические поляризации, u_0, ω, $\mathbf{k}_\gamma$ – амплитуда, частота и волновой вектор бегущей акустической волны, $\mathbf{r}$ – радиус-вектор местоположения частицы. После диагонализации ДУС, т.е. перехода к собственному представлению, гамильтониан $\mathcal{H} = \mathcal{H}_{\text{ДУС}} + \mathcal{H}_{ph} + \mathcal{H}_\gamma(t)$ записывается в виде

$$\mathcal{H} = \frac{1}{2}E\sigma_z + G_{ik}U_{ik}^{ph}\left(\frac{\Delta_0}{E}\sigma_x + \frac{\Delta}{E}\sigma_z\right) + \\ + G_\alpha u_0 \cos(\omega_0 t - \mathbf{k}_\gamma \mathbf{r})\left(\frac{\Delta_0}{E}\sigma_x + \frac{\Delta}{E}\sigma_z\right). \quad (4)$$

Обозначим $M = G_\alpha\Delta/E$, $D = 2G_\alpha\Delta/E$ – параметры упругой связи.

Ввиду малости электрического дипольного момента CN^- в $(KCl)_{1-x}(CN)_x$ вкладом электрического диполь-дипольного взаимодействия между различными ДУС для простоты будем пренебрегать. Упругое диполь-дипольное взаимодействие между i-резонансной ДУС ($E \sim \hbar\omega$) и j-й тепловой ДУС ($E \sim k_Б T$; $k_Б$ – постоянная Больцмана, T – температура) через поле фононов описывается в этом представлении гамильтонианом вида (учитываем только связь типа S^zS^z) [9]

$$\mathcal{H}_{ij} = \sum_{i>j} J_{ij}S_i^zS_j^z,$$

$$J_{ij} = C_{ij}\left(\frac{\Delta_i}{E_i}\right)\left(\frac{\Delta_j}{E_j}\right)\frac{1}{r_{ij}^3} = C_{ij}(1-p)^{1/2}\left(\frac{\Delta_j}{E_j}\right)\frac{1}{r_{ij}^3};$$

$$C_{ij} = \frac{1}{4\pi\rho}\left\{\left(\frac{1}{v_t^2} - \frac{1}{v_l^2}\right)[G_{ii}G_{kk}^{(j)} - 3(G_{ii}G_{kn} + \right. \\ + G_{kn}G_{ii}^{(j)})e_ke_n + 15G_{ik}G_{mn}^{(j)}e_ie_ke_me_n] - \\ \left. - 6\left[\frac{1}{v_t^2} - \frac{2}{v_l^2}\right]G_{ik}G_{in}^{(j)}e_ke_n - \frac{2}{v_l^2}G_{ik}G_{ik}^{(j)}\right\}, \quad (5)$$

где J_{ij} – сила упругого взаимодействия; r_{ij} – расстояние между узлами i и j; ρ – плотность вещества, $\mathbf{e} = \frac{\mathbf{r}_j}{r_j}$; v_t, v_l – поперечная и продольная скорости звука в нем. Тогда $\zeta(x) = (r_{ij})^{-3}(G_i\Delta_i/E_i)(G_j\Delta_j/E_j) \sim x$. Запишем функции распределения параметров ДУС. Величины Δ и Δ_0 непрерывно распределены от нуля до E. Согласно [9] функцию распределения параметров Δ и Δ_0 можно заменить функцией распределения параметров E и p вида (что равносильно, но более удобно в расчете) $p = (\Delta_0/E)^2$, $f(E, p) = N_0p^{-1}(1-p)^{-1/2}$, где $N_0 = N_0(x)$ – зависящая от концентрации плотность состояний ДУС на единицу энергии и единицу объема. В отличие от стекол в смешанных кристаллах концентрацию ионов CN^- можно изменять заданным образом, т.е. плотность состояний ДУС меняется в зависимости от x. Функция распределения $\tilde{f}(\zeta)$ величины асимметрии взаимодействия $\zeta(x)$ имеет вид [5] $\tilde{f}(\zeta) = \delta\pi^{-1}(\delta^2 + \zeta^2)^{-1}$, где δ – ширина распределения, $\delta = 4\pi J_{ij}N_0(3N)^{-1}$; N – число "стеклянных" единиц (фрагментов) на единицу объема. Отметим, что в смешанных кристаллах от концентрации x зависят G_α, Δ_0, v_l, v_t [7]. Динамическая часть $\hbar\Delta\omega(t, x)$ упругого взаимодействия (5) модулирует энергетическое расщепление, и зависящее от времени расщепление равно $E(t) = E + \hbar\Delta\omega(t)$. Вклад в энергию резонансной ДУС, обусловленный ее взаимодействием с окружающими тепловыми ДУС, равен $\hbar\Delta\omega(t, x) = \sum_l J_l\zeta_l(t)$, где J_l есть энергия взаимодействия данной резонансной ДУС и l-й тепловой ДУС, равная $\hbar J_l = (1 - p)^{1/2}\Delta C_l/Er_l^3$. Функция ζ_l описывает случайный телеграфный процесс [9], она принимает значения ± 1 в случайные моменты времени. Величина $\Delta\omega(t, x)$ определяет релаксационный процесс,

называемым спектральным диффузионным процессом [9] и играющим большую роль в затухании эха в стеклах и в других неупорядоченных веществах.

Рассчитаем фононное эхо в смешанном кристалле $(KCl)_{1-x}(CN)_x$, возбуждаемое двумя акустическими импульсами. Сигнал эхо – отклик системы на двух- или трехимпульсное акустическое или электромагнитное возбуждение системы, обусловленный разбросом резонансных частот. В отличие от обычного спинового эха, где применяется приближение узкой спектральной линии, в аморфных твердых телах необходимо учитывать большое неоднородное уширение уровней ДУС. Поскольку время обратимой поперечной релаксации T_2^* обратно пропорционально неоднородной ширине линии, то можно говорить о частичном возбуждении неоднородно-уширенной линии узким спектром возбуждающих импульсов. Для этого образец должен возбуждаться не короткими, а длинными импульсами τ_γ ($T_2^* < \tau_\gamma < T_1, T_2$), где T_1, T_2 – времена энергетической и необратимой поперечной релаксаций. При расчетах интенсивностей сигналов эха в этом случае существенна расфазировка не только в интервале между импульсами τ_{21}, но и в течение самих импульсов ($T_2^* < \tau_{21} < T_1, T_2$). В смешанных кристаллах с асимметричным потенциалом гамильтониан взаимодействия ДУС с импульсным полем (звуковым, электромагнитным) содержит как недиагональные, так и диагональные матричные элементы (НМЭ и ДМЭ), зависящие от времени. Мы использовали разработанный нами матричный метод расчета сигналов эха в параэлектрических системах и стеклах с учетом ДМЭ в гамильтониане взаимодействия ДУС с полем [10]. Методом последовательных приближений зависящей от времени теории возмущений рассчитывалась T – экспонента решения уравнения Шредингера $R_n^*(\tau_\gamma)$ для матрицы плотности системы во время действия длинного импульса с использованием следующих параметров малости: $Mu_0/E \ll 1$, $2Du_0/E \ll 1$, $Mu_0\tau_\gamma/\hbar \le 1$. Диагональный оператор, описывающий неоднородное уширение уровней системы и ответственный за появление эха, имеет вид

$$\mathcal{H}_{02} = -z(\omega_0)^{-1}\mathcal{H}_{01};\ z = E/\hbar - \omega;\ \mathcal{H}_{01} = \frac{1}{2}E\sigma_z;$$

z – отклонение резонансной частоты ДУС от ее среднестатистического значения. Так же как в стеклах, функция распределения по z в смешанном кристалле является константой в отличие от парамагнетиков. В представлении взаимодействия в решении уравнения Шредингера $R_n^*(\tau_\gamma)$ во время действия длинного импульса учитывались все члены T – экспоненты, содержащие матричные элементы оператора $\mathcal{H}_{02}$ и недиагональные элементы оператора взаимодействия $\mathcal{H}_\gamma^*(t)$ точно в виде функции от матрицы [11], а также диагональные элементы $\mathcal{H}_\gamma^*(t)$ точно в виде функции от матрицы. Перекрестные члены T – экспоненты, состоящие из произведений ДМЭ и НМЭ в $\mathcal{H}_\gamma^*(t)$, учитывались до третьего порядка теории возмущений включительно. Члены типа $\mathcal{H}_{02}^\alpha \cdot$ $\cdot$ ДМЭ$^\beta \cdot$ НМЭ$^\gamma$ (даже при $\alpha = \beta = \gamma = 1$) не учтены. Тогда решение $R_n^*(\tau_\gamma)$ имеет вид

$$R_n^*(\tau_\gamma) = \begin{Vmatrix} \dfrac{-iz}{g_\gamma}\sin\left(\dfrac{g_\gamma\tau_\gamma}{2}\right) + \cos\left(\dfrac{g_\gamma}{2}\tau_\gamma\right) + \\ + \exp\left\{-\dfrac{i}{\hbar}\dfrac{Du_0}{\omega_0}\cos(\omega\tau_\gamma - \mathbf{k}_\gamma\mathbf{r})\right\} & \dfrac{ie^{ik_\gamma r}F_\gamma}{g_\gamma}\sin\left(\dfrac{g_\gamma}{2}\tau_\gamma\right) - \\ & - \dfrac{iDMu_0^2e^{ik_\gamma r}}{2(\hbar\omega_0)^2}\sin(\omega_0\tau_\gamma - \mathbf{k}_\gamma\mathbf{r}) + \\ & + \dfrac{iDMu_0^2\tau_\gamma\omega_0}{2(\hbar\omega_0)^2}\cos(\omega_0\tau_\gamma - \mathbf{k}_\gamma\mathbf{r}) \\ \dfrac{ie^{-ik_\gamma r}F_\gamma}{g_\gamma}\sin\left(\dfrac{g_\gamma}{2}\tau_\gamma\right) - \\ - \dfrac{iDMu_0^2e^{-ik_\gamma r}}{2(\hbar\omega_0)^2}\sin(\omega_0\tau_\gamma - \mathbf{k}_\gamma\mathbf{r}) + \\ + \dfrac{iDMu_0^2\tau_\gamma\omega_0}{2(\hbar\omega_0)^2}\cos(\omega_0\tau_\gamma - \mathbf{k}_\gamma\mathbf{r}) & \dfrac{iz}{g_\gamma}\sin\left(\dfrac{g_\gamma}{2}\tau_\gamma\right) + \cos\left(\dfrac{g_\gamma}{2}\tau_\gamma\right) + \\ & + \exp\left\{-\dfrac{i}{\hbar}\dfrac{Du_0}{\omega_0}\cos(\omega_0 t_\gamma - \mathbf{k}_\gamma\mathbf{r})\right\} \end{Vmatrix},$$

$$g_\gamma = (F_\gamma^2 + z^2)^{1/2}, \; z = \frac{E}{\hbar} - \omega, \; E = \hbar\omega_0, \; F = \frac{G_\alpha \Delta_0 u_0}{E\hbar}.$$

Учитывая разброс частот как во время действия импульса, так и в промежутке между импульсами, были получены сигналы эха. Сигнал эха появляется как при $z < F$, так и при $z \gtrsim F$. При получении окончательного выражения для интенсивности сигналов эха мы пренебрегли членами $D(\hbar\omega_0)^{-1}\cos(\omega_0 t_\gamma - \mathbf{k}_\gamma \mathbf{r})$, представляющими собой высокочастотную временную функцию, поскольку среднее по времени от $\cos(\omega_0 t_\gamma - \mathbf{k}_\gamma \mathbf{r})$ равно нулю; $\exp[\cos(\omega_0 t_\gamma - \mathbf{k}_\gamma \mathbf{r})] \approx 1$ (использовалось условие $\omega_0 t_\gamma \gg 1$). Вклад в эхо возникает от недиагональных компонент матрицы плотности $\rho(t)$. Обобщенное выражение для интенсивности рассчитанных сигналов первичного эха имеет вид

$$J(\mathbf{k}, t) = \sum_{j=1}^{N_d}\sum_{l=1}^{N_d} \exp\left[i(\mathbf{k} - 2\mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_1)(\mathbf{r}^j - \mathbf{r}^l)\right] \times \\ \times A_m A_n R\langle K\rangle_{c,\zeta} L L^* (\Phi_1^2 + \Phi_2^2), \quad (6)$$

где множитель $R = \exp\{-4\tau_{21}/T_2\}$ описывает собственное затухание эха, обусловленное взаимодействием ДУС с фононами. Величина $\langle K\rangle_{c,\zeta}$ описывает затухание эха, обусловленное спектральной диффузией [9],

$$A_{m(n)} = \sum_{m(n)=-\infty}^{\infty} (-1)^{m(n)} \left[J_{m(n)}\left(\frac{2Du_0}{\hbar\omega_0}\right)\right]^2 \times \\ \times \exp\{\pm i m(n)\mathbf{k}_{1(2)}(\mathbf{r}^j - \mathbf{r}^l)\}.$$

Здесь $J_n(2Du_0/\hbar\omega_0)$ – функции Бесселя первого рода n-го порядка, причем

$$J_n\left(\frac{2Du_0}{\hbar\omega_0}\right) \sim \left(\frac{2Du_0}{\hbar\omega_0}\right)^n n^{-1} \quad \text{при} \quad \left|\frac{2Du_0}{\hbar\omega_0}\right| \ll 1,$$

где m и n – целые числа (m, n = 1, 2, 3 ...). В выражении (6) L равно

$$L = I_0^{1/2}(\mathbf{k}) \int_{-\infty}^{\infty} d\zeta \int_0^{\infty} dE \int_0^1 dp \tilde{f}(\zeta) f(E, p) \operatorname{th}\left(\frac{E}{2k_Б T}\right), \quad (7)$$

где $I_0(\mathbf{k})$ – интенсивность спонтанного излучения изолированной ДУС в направлении $\mathbf{k}$:

$$I_0(\mathbf{k}) = \omega_0^4 \left(\frac{G_\alpha^2}{v_l^5} + \frac{2G_t^2}{v_t^5}\right)(2\pi\rho)^{-1}\sin^2\varphi,$$

ρ – плотность вещества, φ – угол между $\mathbf{k}$ и плоскостью колебаний диполя,

$$\Phi_1 = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{F^3}{g^3} dz \sin^2\left(\frac{g}{2}\tau_2\right)\left[\sin(g\tau_1) - \right. \\ \left. - \frac{2iz}{g}\sin^2\left(\frac{g\tau_1}{2}\right)\right] \exp\{-iz(t - 2\tau_{21} - \tau_1 - \tau_2)\}, \quad (8)$$

$$\Phi_2 = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{2iF^3}{g^3} dz \left(\frac{\Delta}{E}\right)\frac{G_\alpha u_0}{E}\sin\left(\frac{g\tau_1}{2}\right) \times \\ \times \exp\{-iz(t - 2\tau_{21} - \tau_1 - \tau_2)\}. \quad (9)$$

Мы ограничимся случаем, когда амплитуды обоих импульсов равны $F_1 = F_2 = F$, $g_1 = g_2 = g$. Перепишем выражения (8) и (9) в виде

$$\Phi_1 = \frac{F^3}{g^3}\left[I_1(\tau_1) - \frac{1}{2}I_1(\tau_1 - \tau_2) - \frac{1}{2}I_1(\tau_1 + \tau_2) + \right. \\ \left. + I_2(\tau_1) - \frac{1}{2}I_2(\tau_1 - \tau_2) + I_2(\tau_2) - \frac{1}{2}I_2(\tau_1 + \tau_2)\right],$$

$$\Phi_2 = \frac{F^3}{g^3}\frac{Du_0}{E}\left[I_1\left(\frac{\tau_1}{2}\right) - \frac{1}{2}I_1\left(\tau_2 + \frac{\tau_1}{2}\right) + \right. \\ \left. + \frac{1}{2}I_1\left(-\frac{\tau_1}{2} + \tau_2\right)\right].$$

При равных длительностях, когда $\tau_1 = \tau_2 = \tau$, имеем:

$$\Phi_1 = \frac{F^3}{g^3}\left[I_1(\tau) - \frac{1}{2}I_1(2\tau) + 2I_2(\tau) - \frac{1}{2}I_2(2\tau)\right],$$

$$\Phi_2 = \frac{F^3}{g^3}\frac{Du_0}{E}\left[\frac{3}{2}I_1\left(\frac{\tau}{2}\right) - \frac{1}{2}I_1\left(\frac{3}{2}\tau\right)\right],$$

$$I_1(\tau) = \int_0^{\infty} dz \frac{\sin[(F^2 + z^2)^{1/2}\tau]}{(F^2 + z^2)^{3/2}}\cos z t_2$$

– нечетная функция по τ и четная по t_2, где $t_2 \equiv t - 2\tau_{21} - \tau_2 - \tau_1$;

$$I_2(\tau) = \int_0^{\infty} dz \frac{z\sin z t_2}{(F^2 + z^2)^2}\{1 - \cos[(F^2 + z^2)^{1/2}\tau]\}$$

– четная функция по τ и нечетная по t_2. При этом существует связь между $I_1(\tau)$ и $I_2(\tau)$ вида

$$I_2(\tau) = -\int_0^{\tau} \frac{\partial I_1(\tau)}{\partial t_2} d\tau.$$

Используя первое и второе приближения по $Du_0/\hbar\omega_0$ в выражении (6), имеем следующие выражения для сигналов первичного эха:

$$J_1(\mathbf{k}, t) = \sum_{j=1}^{N_d}\sum_{l=1}^{N_d} \exp\left[i(\mathbf{k} - 2\mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_1)(\mathbf{r}^j - \mathbf{r}^l)\right] \times \left[J_0\left(\frac{2Du_0}{\hbar\omega_0}\right)\right]^4 R\langle K\rangle_{c,\zeta}\Phi_1^2 LL^*, \quad (10)$$

$$J_2(\mathbf{k}, t) = \sum_{j=1}^{N_d}\sum_{l=1}^{N_d} \exp\left[i(\mathbf{k} - \mathbf{k}_\alpha)(\mathbf{r}^j - \mathbf{r}^l)\right] LL^* \times R\langle K\rangle_{c,\zeta}\Phi_2^2, \quad (11)$$

где $\mathbf{k}_\alpha = (2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1) + (\pm\mathbf{k}_1; \pm\mathbf{k}_2) = 3\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1;\ 2\mathbf{k}_2;\ 2\mathbf{k}_2 - 2\mathbf{k}_1;\ \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$.

Выражение $J_1(\mathbf{k}, t)$ описывает один (основной) сигнал эха, излучаемый на резонансной частоте ω_0 в направлении $\mathbf{k} = 2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$, $|\mathbf{k}| = \omega_0/v_{l,t}$. Подобный сигнал получен в расчетах фотонного эха [11] и диэлектрического эха в стеклах [9]. Выражение $J_2(\mathbf{k}, t)$ описывает "новые" сигналы эха, излучаемые в направлении $\mathbf{k} = \mathbf{k}_\alpha$, которые соответствуют резонансной частоте. Наблюдение $J_2(\mathbf{k}, t)$ затруднительно из-за необходимости выполнения условий синхронизма $\mathbf{k} = 2\mathbf{k}_2$, $\mathbf{k} = 3\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$, поэтому $J_2(\mathbf{k}, t)$ будет излучаться на частоте в два раза меньшей частоты возбуждающего генератора в том случае, когда вдоль направления $\mathbf{k}$ имеется звуковая мода, скорость которой в два раза меньше моды $\mathbf{k}_2$. Наблюдение "новых" сигналов позволит непосредственно определить G_t для поперечной звуковой моды и энергию асимметрии потенциала. Если возбуждение основного сигнала связано с продольной звуковой волной, то и его излучение связано с продольной волной. Если бы было возможно учесть все члены T – экспоненты для перекрестных членов (как это было нами сделано ранее [10] при возбуждении системы короткими импульсами), то число "новых" сигналов возросло бы неограниченно. Но эти сигналы будут менее интенсивны по сравнению с вышеупомянутыми. Появление дополнительных сигналов обусловлено наличием асимметрии двухъямного потенциала ДУС. В отсутствие асимметрии эти сигналы исчезают. Если при $\Delta = 0$ интенсивность излучения сосредоточена вдоль одного направления $\mathbf{k} = 2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$, то при наличии асимметрии излучение расплывается по различным направлениям $\mathbf{k}_\alpha$. При этом интенсивность основного сигнала уменьшается (за счет появления $\left[J_0\left(2\frac{Du_0}{\hbar\omega_0}\right)\right]^4$ в $J_1(\mathbf{k}, t)$. Необычные условия пространственного синхронизма дополнительных сигналов эха возникают за счет генерации гармоник излучения во время действия импульсов. После окончания действия импульса излучение максимально на резонансной частоте (при этом можно говорить о комбинационном рассеянии – "сворачиванию" гармоник к излучению системы на резонансной частоте. Хотя дополнительные сигналы эха менее интенсивны, но они появляются в другие моменты времени по сравнению с основным сигналом.

Рассмотрим сигналы эха для таких промежутков времени τ_{21}, когда можно пренебречь релаксацией, обусловленной собственным затуханием и спектральной диффузией, тогда

$$J_1(\mathbf{k}, t) \approx \left[J_0\left(\frac{2Du_0}{\hbar\omega_0}\right)\right]^4 \frac{4\sin^2\varphi N_0^2(x) G_\alpha^2}{\hbar^4(2\pi\rho v_\Phi^5)} \times \left[\int_{-\infty}^{\infty} d\Im \frac{\delta}{\pi(\delta^2+\zeta^2)} \int_0^\infty \mathrm{th}\left(\frac{E\beta}{2}\right) E^2 dE \times \int_0^1 p^{-1}(1-p)^{-1/2} dp\right]^2 \Phi_1^2; \quad (12)$$

$$J_2(\mathbf{k}, t) \approx \frac{4\sin^2\varphi N_0^2(x) G_\alpha^2 F^2}{\hbar^2 2\pi\rho v_\Phi^5} \left[-\int_{-\infty}^{\infty} d\zeta \frac{\zeta\delta}{\pi(\delta^2+\zeta^2)} \times \int_0^\infty \mathrm{th}\left(\frac{E\beta}{2}\right) dE \int_0^1 p^{-3/2}(1-p)^{-1/2} dp + \int_{-\infty}^{\infty} d\Im \frac{\delta}{\pi(\delta^2+\zeta^2)} \int_0^\infty \mathrm{th}\left(\frac{E\beta}{2}\right) E dE \int_0^1 p^{-3/2} dp\right]^2 \Phi_2^2. \quad (13)$$

Здесь

$$\beta = 1/k_Б T,\ \Delta = -\zeta + E\sqrt{1-p},$$

$$I_0(\mathbf{k}) = \frac{E^4}{\hbar^4}\left(\frac{G_l^2}{v_l^5} + \frac{2G_t^2}{v_t^5}\right)(2\pi\rho)^{-1},$$

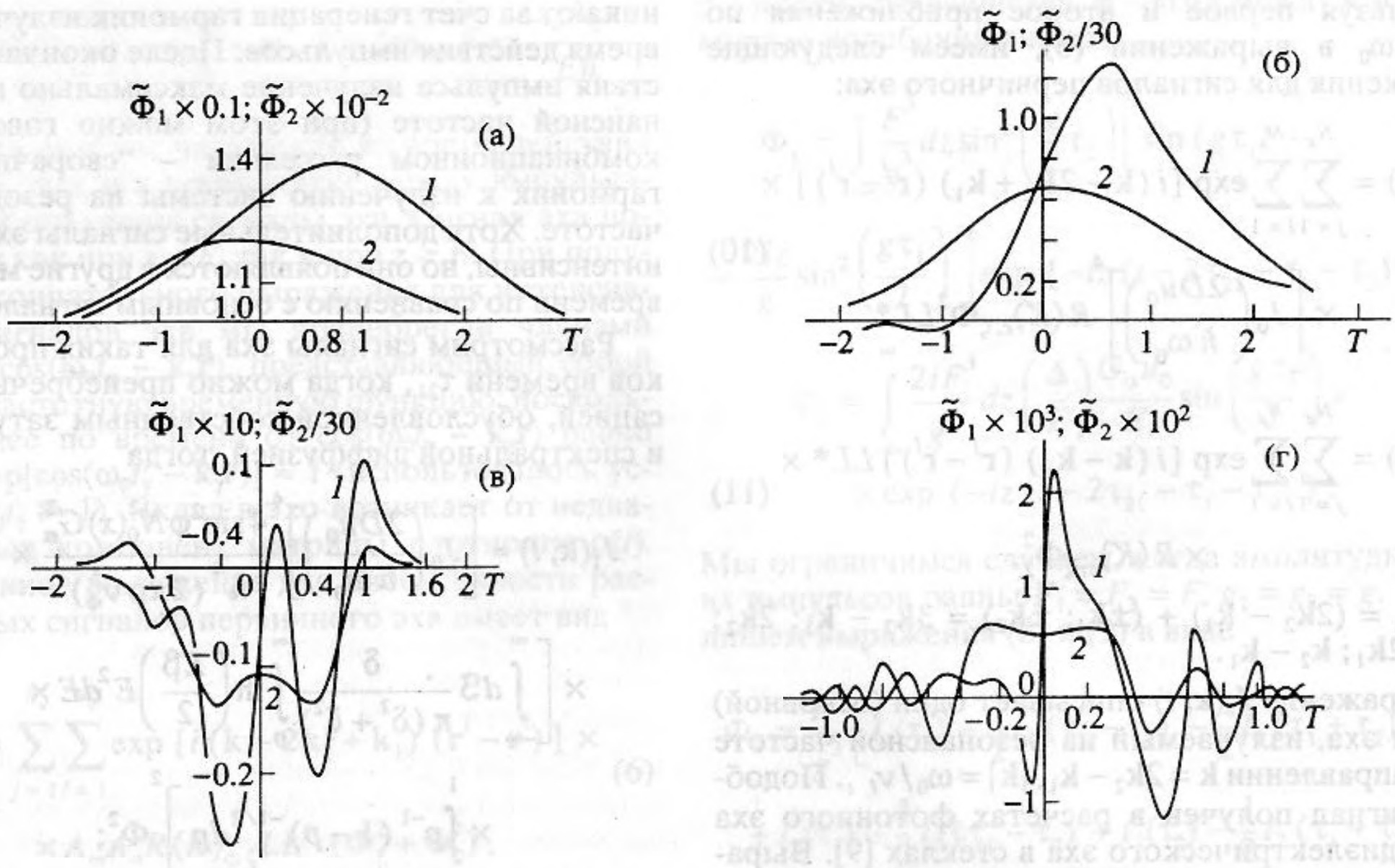
$$G_\alpha^2 = \left(\frac{G_l^2}{v_l^5} + \frac{2G_t^2}{v_t^5}\right)\left(\frac{1}{v_l^5} + \frac{2}{v_t^5}\right)^{-1}.$$

Интегралы по ζ, E и p были рассчитаны нами аналитически, и в результате интегрирования получены следующие выражения:

$$J_1(\mathbf{k}, t) \approx N_0^2(x) c_1^2 \Phi_1^2; \quad c_1^2 = \frac{1.2\times10^{12}\sin^2\varphi}{\gamma^2\beta^6\hbar^4 2\pi\rho v_\Phi^5}; \quad (14)$$

$$J_2(\mathbf{k}, t) \approx N_0^2(x) c_2^2 \Phi_2^2 F^2; \quad c_2^2 = \frac{1.6\times10^{10}\sin^2\varphi}{\beta^4\hbar^2 2\pi\rho v_\Phi^5}. \quad (15)$$

Выражения (8), (9) для Φ_1 и Φ_2 описывают форму основного и дополнительных сигналов эха.



Форма основного Φ_1 (кривая *1*) и дополнительного Φ_2 (кривая *2*) сигналов фононного эха при различных амплитудах и длительностях накачки. *f*: а – 0.1, б – 1, в – 5, г – 20; $T = |t_2|/\tau$, $t_2 \equiv t - 2\tau_{21} - \tau_2 - \tau_1$, $f = F\tau$, $\tilde{\Phi}_1 = \Phi_1$; $\tilde{\Phi}_2 = F\Phi_2$.

В общем случае расчет формы сигналов эха выполнить аналитически до конца не удается. В случае сильных полей, для которых $\tau F \gg 1$, $f = \tau F$, $T = |t_2|/\tau$, можно рассчитать аналитически интегралы, описывающие форму сигналов:

$$I_1(\tau) = \int_0^\infty \frac{\sin(\sqrt{F^2+z^2}\,\tau)\cos z t_2}{(F^2+z^2)^{3/2}}\,dz \simeq$$

$$\simeq \tau^2 \int_0^\infty \frac{\sin(f^2+\zeta^2)^{1/2}\cos\zeta T}{(f^2+\zeta^2)^{3/2}}\,d\zeta \simeq$$

$$\simeq \tau^2 \sin f \int_0^\infty \frac{\cos\zeta T\,d\zeta}{(f^2+\zeta^2)^{3/2}} \simeq \tau^2 \sin f \frac{T\sqrt{\pi}}{2f\Gamma(3/2)} K_1(fT) =$$

$$= \tau^2 \sin(f)\frac{T}{f} K_1(fT);$$

$$I_1(\tau) = \frac{t_2}{F}\sin(F\tau)\,K_1(Ft_2).$$

Тогда

$$\Phi_2 = \frac{3}{2}\frac{t_2}{F}\sin\left(\frac{F\tau}{2}\right)K_1(Ft_2) - \frac{1}{2}\frac{t_2}{F}\sin\left(\frac{3}{2}F\tau\right)K_1(Ft_2), \qquad (16)$$

где $\Gamma(3/2)$ – гамма-функция; $K_1(Ft_2)$ – модифицированная функция Бесселя 2-го рода первого порядка. Из (16) видно, что новый сигнал эха имеет сложную форму затухающих осцилляций, зависящую от амплитуды и длительности импульса накачки. Для нахождения формы основного и дополнительных сигналов было проведено численное интегрирование выражений (8), (9). На рисунке представлены результаты численного анализа формы сигналов эха при различных амплитудах возбуждающих импульсов. Видно, что форма эха зависит от амплитуды и длительности импульсов накачки сложным образом и с увеличением *f* затухает осцилляционно. Наблюдаются эффекты запаздывания сигналов основного эха $\tilde{\Phi}_1$ относительно момента появления сигналов основного эха в спиновых системах с узкими спектральными линиями $t = 2\tau_{21} + \tau_1 + \tau_2$. Расчет показывает, что максимальное значение $\tilde{\Phi}_1^{max}$ на порядок превышает значение $\tilde{\Phi}_2^{max}$. Из рис. 1а и 1б видно, что сигналы основного ($\tilde{\Phi}_1$) и дополнительного ($\tilde{\Phi}_2$) при малых *f* имеют пологую одногорбую форму. С увеличением *f* максимумы заостряются. Временные промежутки появления основного и дополнительного сигналов не совпадают. Форма дополнительного сигнала эха симметрична относительно $T = 0$, т.е. относительно момента

$t = 2\tau_{21} + \tau_1 + \tau_2$ в отличие от основного сигнала, который асимметричен относительно $T = 0$. Максимум основного сигнала появляется в точке $T \approx 0.8$; $\tilde{\Phi}_1$ и $\tilde{\Phi}_2$ существуют на временном промежутке $T = [-2, 2]$, т.е. на $[2\tau_{21}, 2\tau_{21} + 4\tau]$. На рис. 1в и 1г показано, как эволюционирует форма сигналов эха $\tilde{\Phi}_1$ и $\tilde{\Phi}_2$ при дальнейшем увеличении f (т.е. амплитуды и длительности возбуждающих импульсов) – появляется сложная осциллирующая структура. При увеличении f форма $\tilde{\Phi}_1$ асимметрична относительно точки $T = 0$, имеется небольшое запаздывание сигнала. Сигналы $\tilde{\Phi}_1$ и $\tilde{\Phi}_2$ при $f = 5$ существуют на временном промежутке $T = [-1.6, 1.6]$, а при $f = 20$ на промежутке $[-1, 1]$, т.е. $[2\tau_{21} + \tau, 2\tau_{21} + 3\tau]$. Ширина эха сужается с увеличением амплитуды и длительности импульсов. Полученная нами форма эха для основного сигнала $\tilde{\Phi}_1$ примерно совпадает с результатами [11].

Итак, длительность сигналов эха уменьшается с увеличением амплитуды и длительности импульсов накачки. Длительность этих сигналов определяется не разбросом резонансных частот (как в спин-системах с узкими линиями, возбуждаемыми короткими импульсами), а только длительностями импульсов накачки.

Зависимость амплитуды сигнала эха от времени задержки τ_{21} определяется средним по времени и по конфигурациям тепловых ДУС значением величины

$$K(\tau_{21}) = \exp\left[-i\int_0^{2\tau_{21}} \Delta\omega(t')S(t')dt'\right],$$

где $S(t)$ – ступенчатая функция,

$$S(t) = \begin{cases} +1 & \text{при} \quad 0 < t < \tau_{21}, \\ -1 & \text{при} \quad t > \tau_{21}. \end{cases}$$

Усредненное значение $\langle K(\tau_{21})\rangle_{c,\zeta}$ описывает затухание эха, обусловленное спектральной диффузией. Оно рассчитано в [9], где $\langle\ldots\rangle_c$ означает среднее по конфигурациям тепловых ДУС, $\langle\ldots\rangle_\zeta$ означает среднее по различным телеграфным процессам (ζ_l), описывающим скачки тепловых ДУС с частотой Г. Распределение по Г (т.е., физически по туннельной прозрачности барьера) имеет вид: $1/\Gamma(1 - \Gamma/\Gamma_0)^{1/2}$, где Γ_0 – характерная частота скачков ДУС, для которых $E \approx kT$. Усредненное $\langle K\rangle_{c,\zeta}$ равно [9]

$$\langle K\rangle_{c,\zeta} = \exp\left[-(1-p)^{1/2}\frac{S(\tau, 0)}{\tau_d}\right];$$

$$S(\tau, 0) = \int_0^\infty \frac{dJ}{J^2}\int_0^{\Gamma_0}\frac{d\Gamma}{\Gamma}[1 - \langle K\rangle_\zeta]; \quad \frac{\hbar}{\tau_d} \approx \frac{G_\alpha^2 N_0(x)T}{\rho v_\Phi^2}.$$

Анализ выражения для $\langle K\rangle_{c,\zeta}$, проведенный в [9], показывает, что затухание в структурных стеклах благодаря спектральной диффузии в ряде случаев может иметь степенной, а не экспоненциальный характер. Хотя в большинстве экспериментов затухание эха в аморфных веществах экспоненциальное [1, 4, 6].

В отличие от структурных стекол концентрация туннелирующих CN^- частиц в смешанных кристаллах может изменяться в широких пределах. При малых x ионы CN^- слабо взаимодействуют между собой, с ростом x ($x \geq 0.03$) взаимодействия между CN^- уширяют распределение величин и уменьшают число свободных туннелирующих ДУС при низких температурах (появляется "коллективное туннелирование"). В результате при небольшом увеличении x плотность состояний $N_0(x)$ вначале растет, а затем при увеличении x уменьшается. Такое поведение соответствует экспериментальным данным [6], полученным из измерений амплитуды диэлектрического эха в $(KBr)_{1-x}(CN)_x$ (рис. 3 этой работы). Излом кривой $N_0(x)$ наблюдается при $x \approx 0.56$. В [6] наблюдалось также аналогичное "аномальное" поведение скорости дефазировки $T_2^{-1}(x)$ (T_2 – время поперечной необратимой релаксации, обусловленное упругими диполь-дипольными взаимодействиями между ДУС). Вначале с ростом x наблюдается увеличение $T_2^{-1}(x)$, а затем при дальнейшем увеличении x скорость дефазировки уменьшается ввиду сокращения числа свободно туннелирующих ДУС (нижняя часть рис. 3 в [6]). В работе [6] были получены важные результаты: 1) скорости дефазировки $T_2^{-1}(x)$ не пропорциональны плотности туннельных состояний $N_0(x)$, как в стеклах; 2) существование широкого распределения асимметричных туннельных потенциалов при $x > 0$, а при $x \longrightarrow 0$ двухъямные потенциалы симметричны.

Оценим интегральные интенсивности рассчитанных эхо-сигналов, используя следующие параметры [6, 7]: $\omega_0 = 0.8$ ГГц, $T = 0.01$ К, $T_1 = 10^{-5}$ с, $T_2 = 1.6 \times 10^{-5}$ с, $\tau_{21} = 10^{-6}$ с, $T_2 = 10^{-7}$ с, $v_l = 4 \times 10^3$ м/с, $L = 5 \times 10^{-3}$ м, $S_0 = 4 \times 10^{-1}$ м^2 [10], $v_l = 2v_t$. При $x = 0.5$ $\Delta > \Delta_0$, $\Delta \approx 0.5 \times 10^{-18}$ эрг; $N_d \approx N_0(x)\hbar\tau_\gamma^{-1} \times \mathrm{th}(\hbar\omega_0/2k_Б T)$; $G_l \approx 1.8 \times 10^{-13}$ эрг; $J_1^{инт}$ $(x = 0.5) \approx 4 \times 10^6$ эрг/с, $J_2^{инт}$ $(x = 0.5) \approx 10^5$ эрг/с. При $x = 0.25$ $\Delta \approx \Delta_0$, $\Delta \sim 0.4 \times 10^{-18}$ эрг, $N_d \sim 0.2 \times 10^{13}$ см$^{-3}$, $G_l = 1.2 \times 10^{-13}$ эрг, $J_1^{инт} \sim 10^5$ эрг/с, $J_2^{инт} \sim 10^4$ эрг/с.

Из приведенных оценок следует, что "новые" сигналы, обусловленные асимметрией, могут наблюдаться при рассмотренных выше условиях. Состояния с большими асимметриями сильнее связаны с другими ДУС. Когда концентрация примесей уменьшается, распределение состояний

с данной энергией E сдвигается в сторону больших значений Δ_0. Новые сигналы эха могут быть измерены при больших концентрациях x. Оценки показывают наличие интенсивных откликов системы. Все сигналы могут быть обнаружены экспериментально. Отличие экспериментальных условий наблюдения новых когерентных фононных сигналов заключается в следующем. Ввиду меньшей интенсивности этих сигналов их наблюдение возможно в достаточно интенсивных переменных полях, однако отношение $G_\alpha u_0 \Delta_0 / E$ к величине энергетического расщепления должно быть меньше единицы. Новые сигналы генерируются в направлениях $\mathbf{k} = \mathbf{k}_\alpha$, поэтому приемник сигнала надо ориентировать вдоль одного из этих новых направлений. Результаты расчетов позволяют получать ценную информацию об аморфном состоянии вещества и определять величины упругих дипольных моментов, времена релаксации, туннельные параметры, величину деформационного потенциала для продольной и поперечной моды, зависящую от концентрации плотность туннельных состояний. Эти измерения позволят также изучить роль диполь-дипольных взаимодействий в туннельной модели смешанных кристаллов типа $(KBr)_{1-x}(CN)_x$. Анализ механизмов генерации фононов может использоваться при создании генераторов и усилителей гиперзвука.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Phillips W.A.* Two-level states in glasses // Rep. Prog. Phys. 1987. V. 50. № 6. P. 1657 - 1708.
2. *Гольданский В.И., Трахтенберг Л.И., Флеров В.Н.* Туннельные явления в химической физике. М.: Наука, 1986. С. 294.
3. *Копвиллем У.Х.* Фононное и фотонное эхо в стекле // Укр. физ. журн. 1976. Т. 21. С. 1215 - 1217.
4. *Graebner John E., Golding B.* Phonon echoes in glass at low temperatures // Phys. Rev. B. 1979. V. 19. № 2. P. 964 - 975.
5. *Klein M.W., Fisher B., Anderson A.C., Anthony P.J.* Strain interactions and the low-temperature properties of glasses // Phys. Rev. B. 1978. V. 18. № 10. P. 5887 - 5891.
6. *Foote M.C., Golding B.* Dielectric echoes in an orientational glass: $(KBr)_{1-x}(KCN)_x$ // J. Phys. condens. Matter. 1989. V. 1. № 41. P. 7751 - 7756.
7. *Yoreo D., Knaak W., Meissner M., Pohl R.O.* Low-temperature properties of crystalline $(KBr)_{1-x}(KCN)_x$: a model glass // Phys. Rev. B. 1986. V. 34. № 12. P. 8828 - 8842.
8. *Laikhtman B.D.* General theory of spectral diffusion and echo decay in glasses // 1985. V. 31. № 1. P. 490 - 504.
9. *Гуревич В.Л., Мурадов М.И., Паршин Д.А.* Электрическое дипольное эхо в стеклах // Журн. эксперим. теорет. физики. 1990. Т. 97. С. 1644 - 1660.
10. *Вагапова Ф.С., Сабурова Р.В.* К теории фононного эха в стекле при низких температурах // Физика тв. тела. 1980. Т. 22. № 10. С. 3118 - 3123.
11. *Вагапова Ф.С., Сабурова Р.В.* Фононное эхо в сверхпроводящем стекле $Pd_{30}Zr_{70}$ // Сверхпроводимость. 1991. Т. 4. № 1. С. 42 - 49.
12. *Маныкин Э.А., Самарцев В.В.* Оптическая эхоспектроскопия. М.: Наука, 1984. С. 269.

Phonon Echo in Mixed Crystals Under High Inhomogeneous Broadening

F. S. Vagapova and R. V. Saburova

A theory describing the microwave phonon echo generated in mixed crystals $(KBr)_{1-x}(CN)_x$ by long acoustic pulses is developed. The origin of the echo is shown to be connected with the tunneling CN^- ions that are considered to be analogs to the two-level systems (TLS) in glasses at low temperatures. In addition to the initial asymmetry of the two-well potential, distribution of the interaction symmetry due to elastic dipole-dipole TLS interactions is used in the TLS spectrum. The concentration-dependent density of TLS states, the spread in frequencies of tunnel splittings, and other distributions for glass parameters are included in calculations. New signals that are due to the asymmetry of the TLS potential were detected. They revealed unusual spatial synchronism. The intensity and shape of echo signals are calculated using analytical and numerical integration methods. The effects of delayed responses were found. A verifying experiment is proposed.