Письма в ЖЭТФ, том 89, вып. 3, с. 143 – 147

Влияние магнитного поля на дипольное эхо в стеклах, обусловленное квадрупольными моментами ядер

А. В. Шумилин[*1)], *Д. А. Паршин*[+]

[*]*Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, 194021 Санкт-Петербург, Россия*

[+]*Санкт-Петербургский государственный политехнический университет, 195251 Санкт-Петербург, Россия*

Поступила в редакцию 9 декабря 2008

Проведено теоретическое рассмотрение влияния магнитного поля на амплитуду дипольного эха в стеклах при температурах порядка 10 мК, обусловленного наличием в стекле несферических ядер с электрическими квадрупольными моментами. Показано, что в этом случае двухуровневые системы (ДУС), определяющие свойства стекол при низких температурах, превращаются в более сложные – многоуровневые системы. Эти системы обладают новыми (по сравнению с обычными ДУС) свойствами, например, осцилляциями амплитуды электрического дипольного эха в магнитном поле. В рамках теории возмущения выведена общая формула, описывающая амплитуду эха в произвольно расщепленной ДУС. Проведены детальные аналитический и численный анализы этой формулы. Получено хорошее качественное и количественное согласие теории с экспериментальными данными.

PACS: 61.43.–j, 76.60.Gv, 76.60.Lz, 81.05.Kf

1. Введение. Известно, что в стеклах при температурах ниже 1 К наблюдается ряд универсальных свойств, принципиально отличных от свойств аналогичных кристаллов. Эти свойства практически не зависят от химического состава стекла и, таким образом, являются следствием самой структуры аморфного твердого тела, точнее, факта отсутствия в стекле дальнего порядка [1]. Одно из подобных универсальных явлений – двухимпульсное дипольное эхо.

Сущность рассматриваемого эффекта состоит в том, что при подаче на стекло двух коротких электромагнитных импульсов с частотой порядка 1 Ггц, разделенных интервалом времени τ, можно обнаружить отклик в дипольном моменте системы на той же частоте через время τ после действия второго импульса.

Согласно общепринятой на данный момент теории Андерсона, Гальперина, Вармы и Филлипса [1], все эти свойства объясняются существованием в стекле так называемых двухуровневых систем (ДУС) – групп атомов, способных туннелировать между двумя минимумами двухъямного потенциала. К настоящему времени, однако, микроскопическая природа ДУС в большинстве стекол остается неизвестной.

В 2002 г. было обнаружено интересное явление [2], которое заключалось в том, что амплитуда дипольного эха в некоторых немагнитных стеклах проявляла сильную немонотонную (осциллирующую) зависимость от магнитного поля уже в достаточно слабых магнитных полях (порядка 10 мТл). Была высказана гипотеза, согласно которой причиной этой немонотонной зависимости дипольного эха от магнитного поля является наличие в стекле ядер с электрическим квадрупольным моментом (или, что то же самое, ядерным спином $J \geq 1$) [3].

Это предположение качественно согласуется с экспериментальными данными, в частности, с результатами недавних измерений дипольного эха в глицероле ($C_3H_8O_3$) [4]. В ходе этих экспериментов было показано, что замена водорода, имеющего ядерный спин $J = 1/2$ и, следовательно, не обладающего ядерным квадрупольным моментом, на дейтерий ($J = 1$, обладает ядерным квадрупольным моментом) приводит к усилению зависимости эха от магнитного поля более чем на порядок величины.

Зависимость амплитуды эха от магнитного поля теоретически исследовалась Вюргером, Фляйшманом и Энссом [3, 5], а также одним из авторов настоящей работы [6]. Однако детальное сравнение теоретических результатов с экспериментом в этих работах не проводилось. Целью настоящей работы является детальное сопоставление результатов теории [6] с имеющимися экспериментальными данными. Мы провели теоретический анализ полученной общей формулы в разных предельных случаях и показали, что теория достаточно хорошо согласуется с экспериментом не

[1)]e-mail: hegny@list.ru

только качественно, но и в ряде случаев количественно.

2. Взаимодействие ДУС с ядерными квадрупольными моментами. Напомним вкратце, как влияет наличие атомов с ядерным квадрупольным моментом на свойства двухуровневых систем, и, в частности, на амплитуду дипольного эха в стеклах [6]. Пусть среди атомов, смещающихся при туннелировании ДУС, есть атом с ядерным квадрупольным моментом. Энергия его квадрупольного взаимодействия с микроскопическим электрическим полем и зеемановского взаимодействия с внешним магнитным полем приводят к тому, что уровни ДУС расщепляются, и ДУС превращается в систему, состоящую из двух одинаковых серий, содержащих (каждая) $2J+1$ уровней. Эти серии разделены энергией исходной ДУС E, много большей энергетических расщеплений внутри серий.

Гамильтониан подобной системы можно записать следующим образом [6]:

$$\widehat{\mathcal{H}}_{\rm tot} = \frac{1}{2}\begin{pmatrix} E & 0 \\ 0 & -E \end{pmatrix} \otimes \widehat{1}_Q + \widehat{1}_\sigma \otimes \widehat{\widehat{W}}_Q + \\ + (\mathbf{F}\cdot\mathbf{m})\frac{1}{E}\begin{pmatrix} \Delta & \Delta_0 \\ \Delta_0 & -\Delta \end{pmatrix} \otimes \widehat{1}_Q + \\ + \frac{1}{E}\begin{pmatrix} \Delta & \Delta_0 \\ \Delta_0 & -\Delta \end{pmatrix} \otimes \widehat{\widehat{V}}_Q. \quad (1)$$

Здесь $\widehat{1}_\sigma$, $\widehat{1}_Q$ – единичные матрицы в пространствах ДУС (2×2) и проекций ядерного спина ($N\times N$, $N = 2J+1$), соответственно; Δ – разница минимумов энергии двухъямного потенциала, Δ_0 – амплитуда туннелирования исходной (нерасщепленной) ДУС, $E = \sqrt{\Delta^2+\Delta_0^2}$ – полная энергия ДУС (без учета эффектов тонкого расщепления); $\mathbf{F}$ – переменное электрическое поле, $\mathbf{m}$ – электрический дипольный момент ДУС; $\widehat{\widehat{W}}_Q = \widehat{\mathbf{M}}\cdot\mathbf{H} + \widehat{Q}_{\alpha\beta}\varphi_{\alpha\beta}(0)$, где $\widehat{\mathbf{M}}$ – магнитный момент ядра, $\mathbf{H}$ – внешнее магнитное поле, $\widehat{Q}_{\alpha\beta}$ – оператор ядерного квадрупольного момента [7] (выраженный через оператор спина ядра $\widehat{\mathbf{J}}$), $\varphi_{\alpha\beta}(0)$ – тензор вторых производных электрического потенциала, взятый в максимуме двухъямного потенциала. Второй член в уравнении (1), содержащий $\widehat{\widehat{W}}_Q$, создает тонкое расщепление ДУС. При этом мы предполагаем, что в качестве базиса спиновых волновых функций ядра выбраны собственные функции оператора $\widehat{\widehat{W}}_Q$, и его матрица диагональна в этом базисе. Последнее слагаемое в гамильтониане (1) содержит оператор $\widehat{\widehat{V}}_Q = \widehat{Q}_{\alpha\beta}\varphi'_{\alpha\beta}(0)|x_{\min}|/x_0$, где $\varphi'_{\alpha\beta}(0)$ – производная тензора $\varphi_{\alpha\beta}$ по обобщенной координате ДУС – x, $|x_{\min}|/x_0$ – отношение смещения атомов при туннелировании ДУС к характерному межатомному расстоянию x_0.

В выражении (1) первый член задает двухуровневую систему, второй – тонкое расщепление ДУС за счет магнитного и квадрупольного моментов ядра, третий определяет матричные элементы переходов между различными парами уровней в СВЧ поле. И, наконец, четвертый член смешивает уровни системы, что приводит к разрешению переходов между различными уровнями тонкого расщепления, и, в конечном итоге, к осцилляциям дипольного эха в магнитном поле. При этом из-за того, что $|x_{\min}|/x_0 \ll 1$, этот член оказывается мал и может быть рассмотрен по теории возмущений.

Проводя вычисления в минимально возможном (втором) порядке теории возмущений, приходим (аналогично [6]) к выражению для амплитуды эха:

$$P_{\rm echo} \propto -iV_1V_2^2\left(\frac{\Delta_0}{E}\right)^4 \times \\ \times \left[1 - \frac{64}{N}\sum_{n,m>n}\left(\frac{\Delta}{E}\right)^2\left|(\widetilde{V}_Q)_{nm}\right|^2\frac{\sin^4(\varepsilon_{nm}\tau/2\hbar)}{\varepsilon_{nm}^2}\right]. \quad (2)$$

Здесь τ – промежуток времени между двумя возбуждающими импульсами, $\varepsilon_{nm} = (\widetilde{W}_Q)_{nn} - (\widetilde{W}_Q)_{mm}$ – разницы энергий тонкого расщепления ДУС. Выражение (2) отличается от аналогичного выражения (44) в [6] главным образом наличием квадрата модуля $\left|(\widetilde{V}_Q)_{nm}\right|^2$, что соответствует тому, что мы не ограничиваемся рассмотрением только вещественных матричных элементов $(\widetilde{V}_Q)_{nm}$.

Магнитное поле входит в зависимость (2), во-первых, через разницу энергий ε_{nm}, а, во-вторых, в неявном виде, через матричные элементы $(\widetilde{V}_Q)_{nm}$ из-за того, что они были рассчитаны в базисе, в котором $\widehat{\widehat{W}}_Q$ диагональна.

Наши численные расчеты показывают, что, как правило, последняя зависимость не играет существенной роли при определении амплитуды эха для ядер с целым спином J. Однако в том случае, когда спин полуцелый и уровни n и m вырождены по теореме Крамерса, матричный элемент $(\widetilde{V}_Q)_{nm}$ не может снимать вырождение и, следовательно, должен обращаться в нуль в нулевом магнитном поле.

Формула (2) позволяет проводить численные расчеты амплитуды эха при заданных параметрах системы. Однако прямой аналитический расчет по этой формуле затруднен из-за необходимости решения уравнения степени $2J+1$ и последующего усреднения результатов (что не удается сделать в общем виде даже для случая $J = 1$). Это приводит к необходимости исследования этой формулы в различных предельных случаях, а также ее численного анализа.

3. Анализ предельных случаев. Анализ выражения (2) мы начнем с наблюдения, что в него входят три независимых масштаба энергии. Первые два – это зеемановская энергия E_H и энергия квадрупольного взаимодействия ядра с микроскопическим электрическим полем E_Q. Третий масштаб $E_\tau \simeq \hbar/\tau$ определяется временем между импульсами.

В том случае, когда магнитное поле настолько велико, что E_H больше остальных двух масштабов, мы можем заменить $\sin^4(\varepsilon_{nm}\tau/2\hbar)$ его средним значением и при расчете ε_{nm} пренебречь энергией квадрупольного взаимодействия в $\widehat{\widehat{\widetilde{W}}}_Q$. При этом амплитуда эха окажется пропорциональной

$$P_{\text{echo}} \propto 1 - C/H^2, \tag{3}$$

где C – коэффициент, не зависящий от магнитного поля.

То есть, амплитуда эха с ростом магнитного поля будет асимптотически (как $1/H^2$) стремиться к константе (что согласуется с экспериментальными данными для больших полей [4, 8]). Более нетривиальное поведение зависимости амплитуды эха от магнитного поля имеет место в том случае, когда зеемановская энергия E_H сравнима по порядку величины или меньше по крайней мере одного из энергетических масштабов E_Q или E_τ.

3.1. *Случай малого квадрупольного расщепления.* Рассмотрим теперь случай, когда энергия квадрупольного взаимодействия $E_Q \ll E_H, E_\tau$. При этом E_H и E_τ могут быть одного порядка. В этом случае при расчете $\widehat{\widehat{\widetilde{W}}}_Q$ мы можем пренебречь квадрупольной энергией (при этом ее все же необходимо сохранить в $\widehat{\widehat{\widetilde{V}}}_Q$). Это позволяет взять в качестве базиса набор собственных функций проекции спина $\widehat{\mathbf{J}}$ на направление магнитного поля. Уровни энергии тонкого расщепления при этом равны $E_n = \mu H(n - J - 1)/J$, где μ – магнитный момент ядра, $n = 1, 2, ..., 2J + 1$.

Также в этом случае можно, используя изотропию стекла и равенство нулю следа тензора $\varphi'_{\alpha\beta}(0)$, выразить средние квадраты модулей всех матричных элементов $\left|(\widetilde{V}_Q)_{nm}\right|^2$ через одну константу. При этом амплитуда дипольного эха (как функция магнитного поля) определяется формулой

$$P_{\text{echo}} \propto -iV_1V_2^2\left(\frac{\Delta_0}{E}\right)^4 \times$$
$$\times\left\{1 - C\,\frac{\Delta^2}{E^2}\left[\frac{\sin^4(\mu H\tau/2J\hbar)}{H^2} + \frac{\sin^4(\mu H\tau/J\hbar)}{4H^2}\right]\right\}. \tag{4}$$

Здесь C – коэффициент, не зависящий от магнитного поля (отличный от коэффициента C в (3)).

Магнитное поле входит в формулу (4) в виде произведения $\mu H\tau$. Это означает, что при изменении τ зависимость амплитуды дипольного эха от H должна масштабироваться по оси абсцисс как $1/\tau$.

Сравним выражение (4) с экспериментальными результатами измерения амплитуды эха как функции магнитного поля в стекле BK7 [8] (рис.1). Видно,

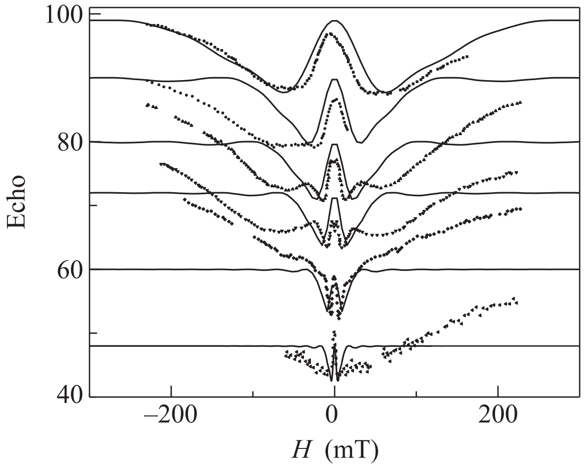

Рис.1. Зависимость амплитуды дипольного эха (в условных единицах) от магнитного поля для разных τ в стекле BK7. Сверху вниз: $\tau = 0.75$ мкс, 1.5 мкс, 2 мкс, 3 мкс, 6 мкс и 12 мкс. Точками обозначены экспериментальные данные [8], сплошной линией – теоретическая зависимость (4) для магнитного момента ядра бария

что экспериментальная зависимость амплитуды эха от H имеет две части, одна из которых сохраняет масштаб при изменении τ, другая же меняет горизонтальный масштаб как $1/\tau$. При этом вторая часть хорошо описывается выражением (4) с μ, равным магнитному моменту ядра атома бария (обладающего ядерным спином 3/2 и присутствующего в BK7). Можно предположить, что немасштабируемая часть зависимости определяется вкладом других атомов с ядерным квадрупольным моментом (например, Na или B), для которых условие $E_\tau \gg E_Q$ не выполняется.

3.2. *Зависимость дипольного эха от магнитного поля в малых полях.* Рассмотрим теперь другой предельный случай, в котором $E_Q \simeq E_\tau$, но зеемановская энергия $E_H \ll E_Q, E_\tau$. Это даст нам представление о характере зависимости эха в малых магнитных полях.

При $H = 0$ разницы уровней сверхтонкого расщепления ДУС ε_{nm} полностью определяются энергией квадрупольного взаимодействия ядра с внутренним полем. Они входят в конечную формулу для амплитуды эха через функцию

$$\sin^4 y/y^2, \quad y = \varepsilon_{nm}\tau/2\hbar. \qquad (5)$$

График этой функции (см. рис.2, левая часть) представляет собой набор максимумов с огибающей

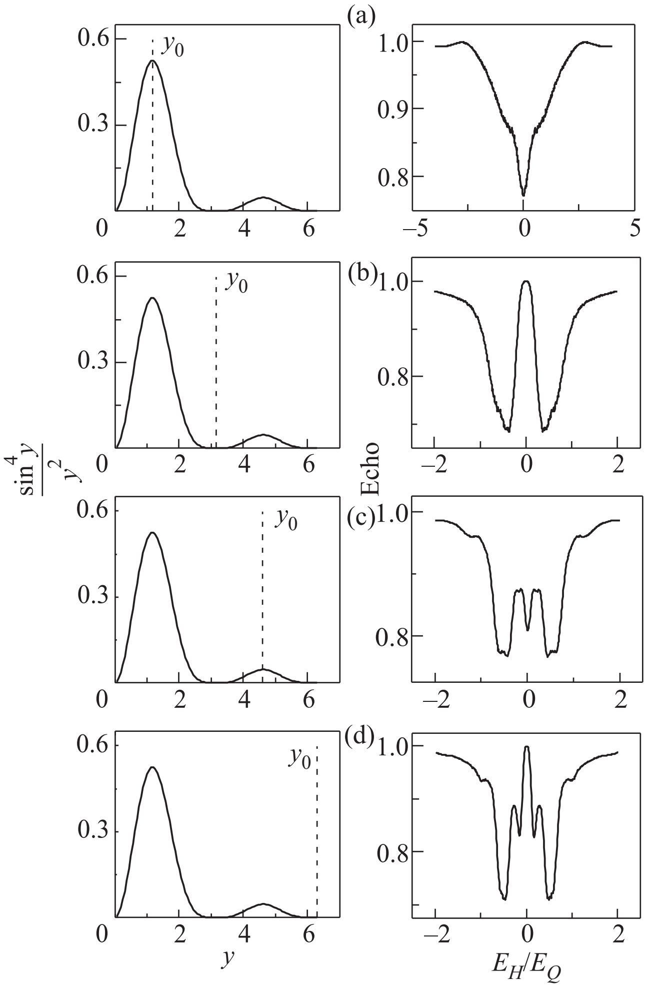

Рис.2. Положения y_0 и соответствующие им результаты численного расчета моделирования амплитуды дипольного эха для $J = 3/2$

$1/y^2$. Характер зависимости амплитуды дипольного эха от H в малых полях будет определяться тем, что в минимум или максимум зависимости (5) будут попадать значения y_0, соответствующие расщеплению в нулевом поле.

Рассмотрим для примера простейший случай ядра с $J = 3/2$. Для такого ядра существует четыре уровня тонкого расщепления и, соответственно, три независимых разницы энергий ε_{nm}. Две из них (ε_{12} и ε_{34}), однако, обращаются в нуль в нулевом магнитном поле вследствие теоремы Крамерса. При этом обращаются в нуль также и соответствующие им матричные элементы $(\widetilde{V}_Q)_{nm}$, что приводит к тому, что вклад этих пар уровней оказывается малым по сравнению с вкладом последней пары ε_{23}.

Таким образом, в этом случае поведение эха в малых полях определяется только одной разницей энергий ε_{23}. Предположим, что время между импульсами τ таково, что в нулевом поле $y_0 = \varepsilon_{23}(H = 0)\tau/2\hbar$ равно πk (где k – целое число), что соответствует минимуму функции (5). Тогда при приложении магнитного поля, независимо от свойств системы, y отклонится от положения минимума, и, в соответствии с (2) амплитуда эха уменьшится. Это приведет к тому, что у зависимости дипольного эха от магнитного поля будет наблюдаться максимум при $H = 0$.

На рис.2b, d показаны результаты численного расчета амплитуды эха по формуле (2) для случая спина $J = 3/2$, $y_0 = \pi, 2\pi$, соответственно (при этом были учтены вклады всех уровней). Видно, что, в соответствии с предсказанием, амплитуда эха имеет максимум в нулевом магнитном поле.

И наоборот, если τ таково, что в нулевом поле y_0 соответствует одному из максимумов функции (5), то при приложении поля амплитуда эха возрастет, и у зависимости эха от магнитного поля будет наблюдаться минимум при $H = 0$. Соответствующие результаты численных расчетов представлены на рис.2a, c.

Для произвольного спина подобный анализ возможен в том случае, когда вклад одного из расщеплений ε_{nm} преобладает над вкладами остальных пар уровней. Это происходит, например, в том случае, когда остальные ε_{nm} достаточно велики, и член $1/\varepsilon_{nm}^2$ в (2) позволяет пренебречь ими.

Таким образом, оказывается, что при изменении промежутка времени τ между импульсами максимум амплитуды эха в нулевом поле должен сменяться минимумом и наоборот.

Подобное поведение экспериментально наблюдалось в глицероле, в котором водород был заменен на дейтерий [9, 10]. Спин дейтерия равен 1, что соответствует тому, что в нулевом магнитном поле существуют три разницы энергий $\varepsilon_{12} \propto 2\eta$, $\varepsilon_{23} \propto 3 - \eta$ и $\varepsilon_{13} \propto 3 + \eta$, где η – параметр асимметрии микроскопического поля, $0 \le \eta \le 1$. В случае, если $\eta \ll 1$, первая разность уровней оказывается много меньше остальных и, в согласии с вышесказанным, может играть основную роль в зависимости амплитуды эха от магнитного поля.

На рис.3 приведены экспериментальные результаты из [9, 10] и положения y_0 для различных значений τ. Они вычислялись, исходя из подобранно-

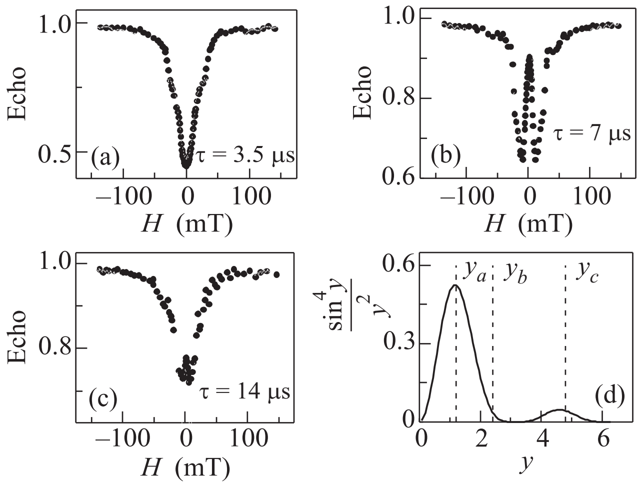

Рис.3. (a), (b), (c) – результаты измерений зависимости амплитуды дипольного эха от магнитного поля в глицероле [9, 10] при $\tau = 3.5$ мкс, 7 мкс и 14 мкс соответственно. На (d) y_a, y_b, y_c – положения y_0 в нулевом поле, соответствующие случаям (a), (b) и (c), соответственно

го значения $\varepsilon_{12}/h \approx 110$ кГц (что сравнимо с экспериментальным значением 150 кГц [4]). Видно, что в тех случаях, когда y_0 находится в районе максимума функции (5), у зависимости амплитуды эха от магнитного поля наблюдается минимум при $H = 0$, и наоборот, когда y_0 оказывается вблизи минимума (5), амплитуда эха имеет максимум в нулевом поле.

Подводя итог, можно сказать, что построенная теория дипольного эха в магнитном поле при учете квадрупольного момента ядра позволяет объяснить все характерные особенности, наблюдаемые на эксперименте, и в некоторых случаях даже добиться количественного соответствия между экспериментальными результатами и аналитическими расчетами. Однако сопоставление зависимости амплитуды дипольного эха от магнитного поля с теорией в произвольном стекле сильно осложнено наложением вкладов различных атомов, обладающих разными ядерными магнитными и квадрупольными моментами.

Авторы приносят свою благодарность А. Фляйшману и В.И. Козубу за плодотворные дискуссии.

А. Шумилин благодарит мэрию Санкт-Петербурга за финансовую помощь в виде гранта для студентов и аспирантов за 2008 г. (кандидатский проект # 2.4/4-05/103).

---

1. *Amorphous Solids Low-Temperatue Properties*, Ed. W. A. Phillips, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, 1981.
2. S. Ludwig, C. Enss, P. Strehlow, and S. Hunklinger, Phys. Rev. Lett. **88**, 075501 (2002).
3. A. Wurger, A. Fleischmann, and C. Enss, Phys. Rev. Lett. **89**, 237601 (2002).
4. P. Nagel, A. Fleischmann, S. Hunklinger, and C. Enss, Phys. Rev. Lett. **92**, 245511 (2004).
5. A. Wurger, J. Low Temp. Phys. **137**, 143 (2004).
6. D. A. Parshin, J. Low Temp. Phys. **137**, 233 (2004).
7. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Квантовая механика (нерелятивистская теория)*, М.: Физматгиз, 1963, стр. 312.
8. S. Ludwig, P. Nagel, S. Hunklinger, and C. Enss, J. Low Temp. Phys. **131**, 99 (2004).
9. M. Brandt, Inaugural-dissertation zur erlangung doctorwurde, Heidelberg, 2004.
10. A. Fleischmann, privat communication, 2003.