

О ПОЛЯРИЗАЦИИ ЯДЕР РЗ ИОНОВ В ДИЭЛЕКТРИЧЕСКИХ ВАН-ФЛЕКОВСКИХ ПАРАМАГНЕТИКАХ

А. Г. Володин, А. В. Егоров, М. С. Тагирѳов, М. А. Теплов,
Г. Феллер, Х. Швабе, М. Штрауде

Изучена спин-решеточная релаксация ядер ^{141}Pr в $\text{Pr}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$ и ^{169}Tm в TmES в сильных магнитных полях (до 60 кЭ) при сверхнизких температурах (70 – 100 мК). Обнаружен прямой ($T^{-1} \sim H^4$) процесс релаксации ядер ^{141}Pr ; скорость релаксации T^{-1} ядер ^{169}Tm не зависит от величины магнитного поля и температуры.

Двадцать лет назад Альтшулер ¹ предложил использовать для магнитного охлаждения особый класс парамагнитных веществ, за которыми ныне закрепилось название ван-флековских парамагнетиков. В качестве примеров в работе ¹ рассматривались кристаллы соединений редкоземельных элементов (РЗЭ), в которых парамагнитные ионы Pr^{3+} , Tb^{3+} , Ho^{3+} и Tm^{3+} имеют немагнитное (синглетное) основное состояние. Идея была довольно скоро реализована в многочисленных экспериментах Андерса и Бухера (см., например, ^{2,3}), которые использовали интерметаллические соединения РЗЭ. Самая низкая температура, полученная к настоящему времени с соединением PrNi_5 , составляет 0,2 мК ⁴. Дальнейшее продвижение в область сверхнизких температур не представляется возможным по принципиальным соображениям: в интерметаллидах РЗ ионы связаны сильным $s - f$ обменным взаимодействием, поэтому такие вещества имеют сравнительно высокие температуры магнитного упорядочения. Вопрос о возможном практическом использовании диэлектрических соединений типа этилсульфата тулия (TmES), предложенного в работе ¹ до настоящего времени остается открытым, поскольку для диэлектриков характерны чрезвычайно длинные времена спин-решеточной релаксации ядер при сверхнизких температурах. Из теории следует ^{5,6}, что скорость прямой (однофононной) релаксации ядер РЗЭ в диэлектриках должна увеличиваться с полем как H^4 . Оценки времени T_1 для ядер ^{169}Tm в TmES дают 9 часов при $T = 20$ мК в поле $H = 80$ кЭ. Экспериментальные данные по релаксации ядер РЗЭ в диэлектриках в сильных магнитных полях отсутствуют.

В данной статье сообщаются результаты экспериментального исследования спин-решеточной релаксации ядер ^{141}Pr ($I = 5/2$) в $\text{Pr}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$ и ^{169}Tm ($I = 1/2$) в TmES в полях вплоть до 60 кЭ при температурах 70 – 100 мК. Образцы помещались непосредственно в ванну растворения рефрижератора $^3\text{He} - ^4\text{He}$; температура контролировалась с помощью калиброванных термометров сопротивления. Методика исследования обоих кристаллов была одинакова. Для регистрации сигнала ЯМР использовался Q -метр, регистрация производилась в сравнительно слабом магнитном поле на низкой частоте: для $\text{Pr}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$ $H_0 = 2000$ Э, $\nu = 13,4$ МГц (произвольно выбранная линия в сложном спектре магнитного резонанса ядер ^{141}Pr), для TmES $H_0 = 650$ Э, $\nu = 17$ МГц, поле H_0 перпендикулярно оси c кристалла. Запись спектра ЯМР осуществлялась в последовательные моменты времени, разделенные большими интервалами $t = 0,5 \div 10$ часов, в течение которых на образцы воздействовало сильное магнитное поле $H = 5 - 60$ кЭ. Величина H_0 выбиралась такой, чтобы время ядерной релаксации было достаточно длинным (1 час для TmES при $T = 70$ мК) и уткой ядерной поляризации за счет взаимодействия ядерных спинов с примесными парамагнитными центрами можно было пренебречь.

Основные экспериментальные факты сводятся к следующему.

1. Установление равновесной намагниченности ядер ^{141}Pr в поле H при температуре $T = 80$ мК происходит по экспоненциальному закону со скоростью $T_1^{-1} = 6,9 \cdot 10^{-25} H^4 \cdot \text{с}^{-1}$ (рис. 1). Минимальное время T_1 , определенное в экспериментах при $T = 80$ мК с полем $H = 47$ кЭ составляет ~ 100 часов.

2. Процесс установления равновесной намагниченности ядер ^{169}Tm не описывается одной

экспонентой (рис. 2). Скорость релаксации T_1^{-1} , определенная условно по начальному участку кривой эволюции намагниченности ($t = 0,5$ часа), не зависит от величины H в интервале от 3 до 58 кЭ и от температуры T в интервале 70 – 100 мК (рис. 1).

Полевая зависимость скорости $T_1^{-1} \sim H^4$ определенно указывает на то, что релаксация ядер ^{141}Pr в кристалле сульфата празеодима осуществляется посредством ядерного прямого процесса.

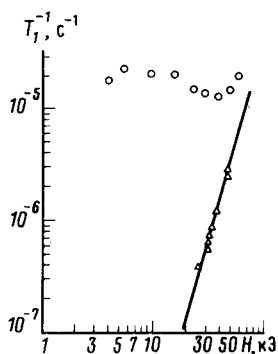


Рис. 1. Скорость релаксации ядер ^{141}Pr в $\text{Pr}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$ при температуре $T = 80$ мК (треугольники) и ^{169}Tm в TmES при температуре $T = 70$ мК (кружки) в сильных магнитных полях (подробности см. в тексте)

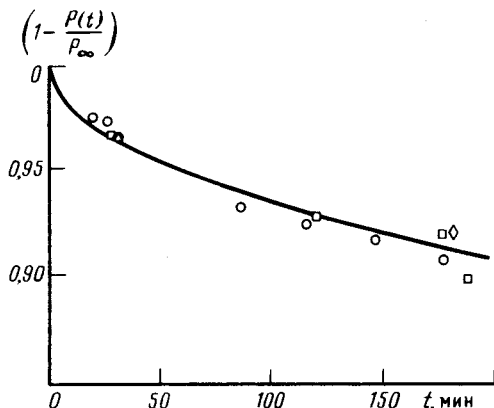


Рис. 2. Изменение во времени ядерной поляризации тулия в кристалле TmES при температурах $T = 70$ мК в сильных магнитных полях: $\circ - H = 38,6$ кЭ, $\square - H = 48,3$ кЭ, $\Delta - H = 50,2$ кЭ, $\diamond - H = 57,9$ кЭ (Образец в форме шарика радиуса $R = 2,5$ мм)

Отсутствие зависимости релаксации ядер ^{169}Tm в TmES от поля и температуры, а также ее неэкспоненциальный характер наводит на мысль о том, что обмен энергией ядерных спинов с решеткой и ванной гелия осуществляется посредством диффузионного процесса. В обычных ядерных парамагнетиках типа CaF_2 коэффициент спиновой диффузии имеет величину порядка $3 \cdot 10^{-12}$ см²/с. Теоретическая оценка различными способами, описанными в литературе, дает величину $D \approx 7,5 \cdot 10^{-11}$ см²/с. Наблюдаемое изменение ядерной поляризации тулия во времени удается описать как процесс диффузии $\Delta P(t)/\Delta P(0) = (6/\pi^2) \sum_{n=1}^{\infty} n^{-2} \cdot \exp[-(\pi n/R)^2 Dt]$ с коэффициентом $D = 4,2 \cdot 10^{-9}$ см²/с (сплошная кривая на рис. 2). Причина anomalously большой величины D остается невыясненной; возможно ее следует искать в сложном характере спин-деформационных возбуждений в магнитно-концентрированных кристаллах РЗ соединений⁷. В любом случае, если быстрый диффузионный процесс имеет место, то это указывает на реальную возможность получения высокой ядерной поляризации диэлектрических порошков методом "грубой силы".

Работа выполнена в рамках договора о научно-техническом сотрудничестве между Казанским и Лейпцигским университетами. Авторы благодарны Т.Б.Богатовой за выращивание кристаллов, В.В.Налетову за изготовление Q-метра, Л.К.Аминову и В.В.Дмитриеву за многочисленные полезные дискуссии.

Литература

1. Альтшулер С.А. Письма в ЖЭТФ, 1966, 3, 177.
2. Andres K., Bucher E. Phys. Rev. Lett., 1968, 21, 1221.
3. Andres K., Bucher E. J. Appl. Phys., 1971, 42, 1522.
4. Kubota M., Foll H.R., Ch. Buchal, Mueller R.M., Pobell F. Phys. Rev. Lett., 1980, 22, 1812.
5. Вайсфельд М.П. ФТТ, 1972, 14, 737.
6. Аминов Л.К., Теплов М.А. УФН, 1985, 147, 49.
7. Altshuler S.A., Malkin B.Z., Teplov M.A., Terpilovskii Sov. Sci. Rev. A Phys., 1985, 6, 61.