

Ядерная магнитная релаксация ^3He в контакте с аэрогелем выше температуры Ферми

А. В. Клочков, В. В. Кузьмин¹⁾, К. Р. Сафиуллин, М. С. Тагиров, Д. А. Таюрский, Н. Малдерс⁺²⁾

Казанский государственный университет, 420008 Казань, Россия

⁺ University of Delaware, Newark, DE, USA

Поступила в редакцию 11 ноября 2008 г.

Исследована спиновая кинетика ^3He в аэрогеле выше температуры ферми-вырождения. Методом импульсного ядерного магнитного резонанса при температуре 1.5 К получены частотные зависимости времен магнитной релаксации T_1 и T_2 адсорбированного, газообразного и жидкого ^3He в 95%-ном силикатном аэрогеле. Обнаружено, что во всех трёх случаях время T_1 линейно зависит от частоты, тогда как время T_2 частотно независимо. Для объяснения полученных зависимостей продольной релаксации предложена теоретическая модель релаксации в адсорбированном слое ^3He , учитывающая нитевидную структуру аэрогеля.

PACS: 67.55.Cx, 76.60.–k

Силикатный аэрогель представляет собой сеть нитей, состоящих из случайно связанных твердых частиц аморфного SiO_2 с размером 3–5 нм. Среднее расстояние между нитями составляет порядка 50–100 нм. Обладая открытой геометрией и большой пористостью (в данной работе использовался образец с пористостью 95%), а также большой удельной поверхностью (порядка $1000\text{ м}^2/\text{г}$), аэрогель представляет собой уникальную систему для исследования эффектов влияния примесей (роль примесей играют нити аэрогеля) на свойства жидкого ^3He и поверхностных эффектов в магнитной релаксации ^3He (в аэрогеле отсутствуют парамагнитные центры, флуктуирующие магнитные поля которых могут влиять на спиновую кинетику жидкого ^3He).

К настоящему времени опубликовано достаточно много экспериментальных и теоретических работ, посвященных исследованиям свойств сверхтекучего ^3He в аэрогелях при сверхнизких температурах [1, 2], однако поведение невырожденной ферми-жидкости ^3He в аэрогеле (температура Ферми жидкого ^3He составляет порядка 0.5 К) остается не изучено. В наших предыдущих работах была детально исследована спиновая кинетика ^3He выше температуры вырождения в ограниченной геометрии пор древесных карбонизатов [3, 4]. Данная работа посвящена определению вкладов различных механизмов в ядерную магнитную релаксацию ^3He в контакте с аэрогелем при температурах выше 1 К.

Методика эксперимента. Для изучения магнитной релаксации в системе “ ^3He –аэрогель”, последний плотно вставлялся в стеклянную ампулу, расположенную в гелиевом (^4He) криостате. Газообразный гелий конденсировался в ампулу при температуре образца 1.5 К, при этом давление газа измерялось в теплой зоне.

Для измерения параметров ядерной магнитной релаксации ^3He использовался импульсный ЯМР спектрометр лабораторного изготовления с диапазоном рабочих частот $3 \div 20$ МГц. Измерения времен спин-решеточной релаксации производились по методике “насыщение – восстановление” с измерением амплитуды сигнала спада свободной индукции после насыщающего импульса. Времена спин-спиновой релаксации измерялись методом Хана. Температура 1.5 К достигалась откачкой паров жидкого ^4He из криостата.

Заполнение поверхности аэрогеля атомами ^3He осуществлялось по следующей методике: газообразный ^3He конденсировался в экспериментальную ячейку небольшими порциями порядка 0.5 см^3 (при нормальных условиях). После конденсации каждой порции контролировалось давление в ячейке, если оно составляло менее 10^{-2} торр, конденсировалась следующая порция. При превышении равновесного давления значения 10^{-1} торр считалось, что вся поверхность аэрогеля заполнена адсорбированным слоем атомов ^3He . Дальнейшая конденсация ^3He в ячейку вызывала возрастание давления и появление газовой фазы. По достижении давления насыщенных паров ^3He 50.3 торр при 1.5 К в ячейке появлялась жид-

¹⁾ e-mail slava625@yandex.ru

²⁾ N. Mulders.

кая фаза и контроль заполнения ячейки жидким ^3He осуществлялся по сигналу ЯМР ^3He .

Результаты. Во всех экспериментах наблюдались одноэкспоненциальные временные зависимости восстановления продольной и спада поперечной намагниченностей для всех исследуемых спиновых систем: адсорбированный ^3He , адсорбированный и газообразный ^3He , адсорбированный и жидкий ^3He , что может объясняться быстрым обменом атомами ^3He в системе. При этом разделения в сигнале ЯМР между “свободным” (жидким или газообразным) ^3He и адсорбированным ^3He не наблюдалось.

Во всех случаях было обнаружено, что время релаксации T_1 приблизительно линейно зависит от ларморовской частоты (f_0) ЯМР ^3He (рис.1). Напротив,

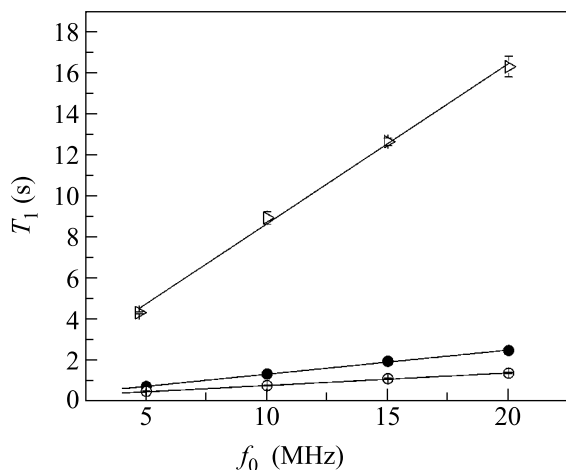


Рис.1. Частотная зависимость времени T_1 : \ominus – адсорбированный ^3He , \bullet – адсорбированный и газообразный ^3He (25 торр), \triangleright – адсорбированный и жидкий ^3He

времена спада поперечной намагниченности во всех фазах ^3He в аэрогеле от частоты ЯМР не зависят (рис.2).

Были получены зависимости времен T_1 и T_2 от количества ядер ^3He в аэрогеле (рис.3, 4).

Для выяснения влияния адсорбированной пленки ^3He на магнитную релаксацию ^3He были выполнены эксперименты с покрытием поверхности аэрогеля атомами ^4He и последующей конденсацией газообразного ^3He до установления равновесного давления 25 торр. Наличие на поверхности аэрогеля адсорбированного слоя атомов ^4He , как видно из рис.5, 6, приводит к удлинению времен магнитной релаксации ^3He более чем на порядок.

Обсуждение. Время поперечной релаксации в адсорбированной пленке ^3He (рис.2) определяется диполь-дипольным взаимодействием ядерных спинов атомов гелия и поэтому независимость времени T_2 от

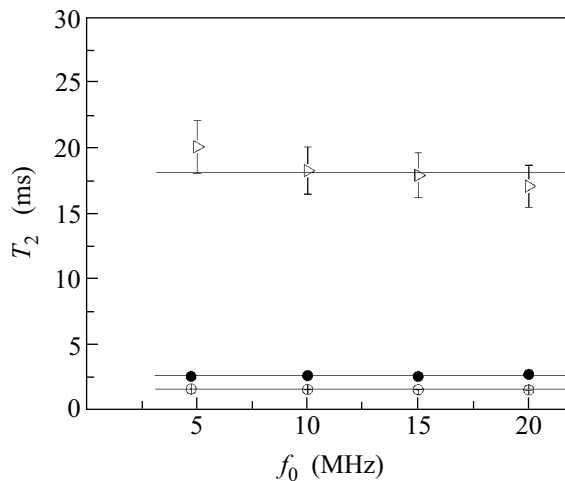


Рис.2. Частотная зависимость времени T_2 : \ominus – адсорбированный ^3He , \bullet – адсорбированный и газообразный ^3He (25 торр), \triangleright – адсорбированный и жидкий ^3He

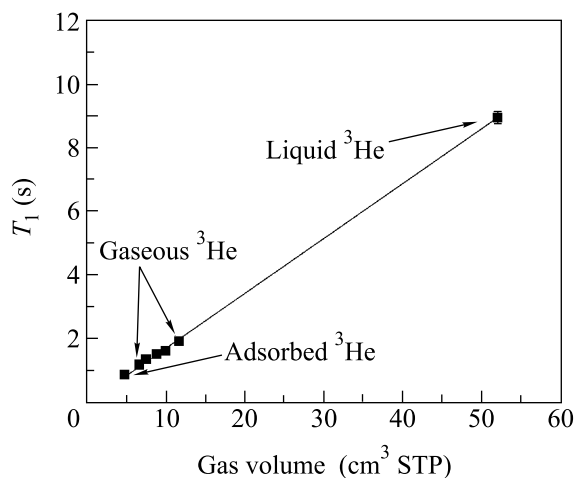


Рис.3. Зависимость времени T_1 от количества ^3He в аэрогеле, $f_0=10$ МГц

частоты (постоянного магнитного поля) не является неожиданной. Что касается продольной релаксации, то в отсутствие парамагнитных примесей единственным энергетическим резервуаром, способным принять энергию системы ядерных спинов атомов адсорбированного слоя ^3He в процессе магнитной релаксации, является резервуар обменных движений (квантовый обмен) твердотельной пленки ^3He . Качественно наблюдаемая линейная частотная зависимость T_1 в адсорбированном слое ^3He при температуре 1.5 К (рис.1), вероятно, может быть объяснена механизмом релаксации ^3He в 2-мерной пленке, предложенном в работе [5] и основанном на понятиях о двумерном спин-диффузионном движении и его характеристической частоте ω_c . При подходящем выбо-

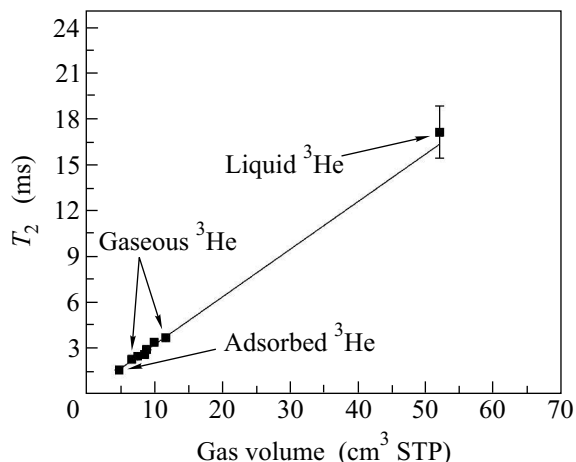


Рис.4. Зависимость времени T_2 от количества ^3He в аэрогеле, $f_0=20$ МГц

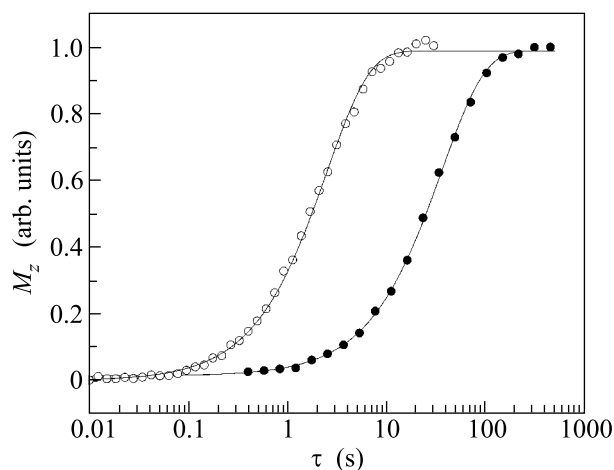


Рис.5. Кривые восстановления ядерной продольной намагниченности газообразного ^3He в аэрогеле в случае покрытия поверхности: \circ – ^3He , \bullet – ^4He , при равновесном давлении в ячейке 25 торр

ре корреляционной функции расчет в рамках данной теории дает линейную зависимость $T_1 \sim \omega$ в ограниченном диапазоне частот $0.3 < \omega/\omega_c < 3$. Авторами [6] для объяснения линейной зависимости в широком диапазоне частот для субстратов с неоднородной поверхностью, в частности для порошка DLX-6000, было предположено, что имеется целый спектр характерных частот ω_c , соответствующих локализации атомов ^3He в полостях с различными поверхностями S_m . Также было показано, что равномерное распределение S_m дает линейную зависимость $T_1 \sim \omega$ в широком диапазоне частот. Однако, на наш взгляд, правомерность использования 2-мерной (фактически плоскостной) модели для описания магнитной релаксации в системе “адсорбированный ^3He –

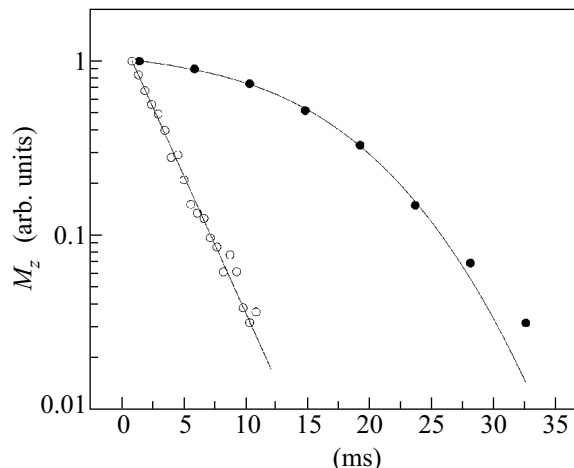


Рис.6. Кривые спада ядерной поперечной намагниченности газообразного ^3He в аэрогеле в случае покрытия поверхности: \circ – ^3He , \bullet – ^4He , при равновесном давлении в ячейке 25 торр

аэрогель” весьма проблематична ввиду нитевидной структуры аэрогеля. В то же время, именно нитевидная структура аэрогеля определяет особенности энергетического спектра адсорбированных атомов ^3He . Если на плоской (двумерной) поверхности твердотельного субстрата потенциал адсорбции и, следовательно, потенциальная яма, в которой находятся атомы адсорбированной пленки ^3He , постоянны вдоль всей поверхности, то в случае нитевидной структуры в областях, близких к пересечению нитей (около узлов структуры, см. рис.7, на котором для простоты показано пересечение только двух нитей), глубина потенциальной ямы непрерывно меняется, а следовательно, практически непрерывным образом меняются уровни энергии адсорбированных атомов ^3He . Таким образом, в области около узла всегда можно найти два поверхностных состояния атомов ^3He , энергия перехода между которыми в точности равна энергии переворота ядерного спина. При этом очевидно, что с увеличением резонансной частоты (приложенного магнитного поля) эти два поверхностных состояния пространственно удаляются и вероятность перехода между ними уменьшается. Уменьшается, соответственно, и скорость продольной релаксации. Детали теоретических расчетов будут опубликованы в ближайшем будущем [7].

Измерения времен T_1 и T_2 ядер ^3He при наличии газообразной и жидкой фаз в ячейке в зависимости от общего количества конденсированных атомов ^3He (рис.3, 4) показали, что времена магнитной релаксации прямо пропорциональны соответствующим временам релаксации в адсорбированном слое и отношению магнитной теплоемкости всей ядерной спиновой

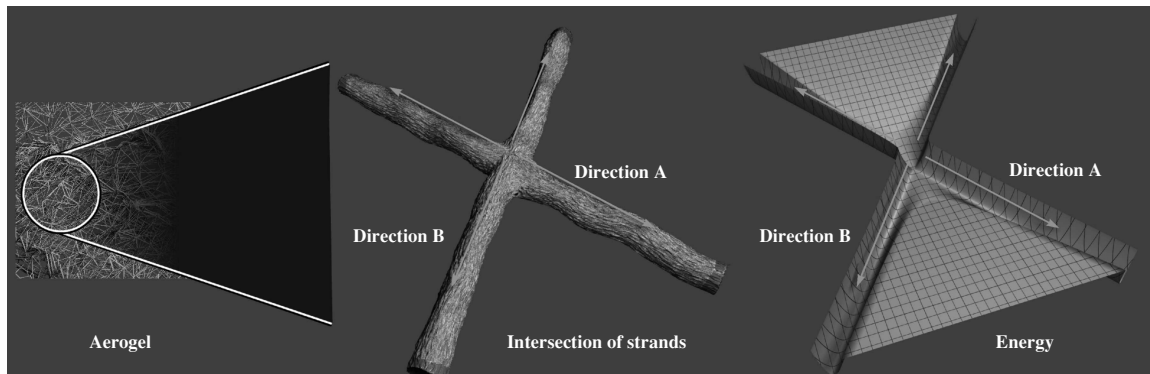


Рис. 7. Нитевидная структура силикатного аэрогеля (слева), две пересекающиеся нити (в центре) и изменение глубины потенциальной ямы для адсорбированных атомов ^3He вблизи узла (области пересечения нитей аэрогеля) (справа)

системы к магнитной теплоемкости спинов адсорбированного слоя, то есть:

$$T_1 = T_{1s} \cdot N_0/N_s, \quad (1)$$

$$T_2 = T_{2s} \cdot N_0/N_s, \quad (2)$$

где T_{1s} (T_{2s}), N_s – время восстановления продольной намагниченности (спада поперечной намагниченности) и число частиц в адсорбированном слое, соответственно; T_1 (T_2), N_0 – время восстановления продольной намагниченности (спада поперечной намагниченности) и число частиц во всей спиновой системе, соответственно. При этом никакого влияния фазового перехода газ–жидкость по мере конденсации ^3He в ячейку на характер поведения магнитной релаксации ^3He не наблюдалось. Количество атомов гелия в газовой и жидкой фазах было оценено из сравнения интенсивности сигнала ССИ в этих фазах с интенсивностью сигнала ССИ максимальной адсорбционной дозы, которая была определена как описано выше. Как видно из рис.3, 4, максимальная адсорбционная доза составляет порядка 9% от максимального количества ^3He в аэрогеле. Полученные результаты могут быть объяснены в рамках модели Хэммела и Ричардсона [8], согласно которой вся намагниченность жидкого ^3He релаксирует через пленку адсорбированного ^3He на поверхности субстрата, и перенос намагниченности ^3He между поверхностной пленкой и жидкостью происходит за времена, много меньшие времени релаксации T_{2s} .

Подтверждением того, что релаксация “свободно” ^3He (газообразного или жидкого) происходит непосредственно через поверхностную пленку, служат эксперименты, выполненные с покрытием поверхности аэрогеля твердой пленкой немагнитного ^4He и последующем добавлении газообразного ^3He , из которых следует, что времена релаксации ^3He при данных

условиях возрастают более чем на порядок по сравнению с чистым ^3He в аэрогеле при том же равновесном давлении 25 торр (рис.5, 6). Количество конденсируемого ^4He соответствовало максимальной адсорбционной дозе ^4He в аэрогеле, которая была определена по той же методике, что и для ^3He . Неэкспоненциальный характер спада поперечной намагниченности ^3He в системе: адсорбированный ^4He и газообразный ^3He (рис.6) объясняется несовершенством экспериментального оборудования – аппаратурная неоднородность магнитного поля обуславливает дополнительный вклад в скорость релаксации поперечной намагниченности [9].

Заключение. В работе исследована спиновая кинетика атомов ^3He в силикатных аэрогелях при температурах выше температуры ферми-вырождения жидкого ^3He . Методом импульсного ядерного магнитного резонанса при температуре 1.5 К получены частотные зависимости времен магнитной релаксации T_1 и T_2 адсорбированного, газообразного и жидкого ^3He в аэрогеле с 95%-ной пористостью. Обнаружено, что во всех трёх случаях время T_1 линейно зависит от частоты, тогда как время T_2 частотно независимо. Показано, что продольная релаксация осуществляется за счет обменных движений в твердотельной адсорбированной пленке атомов ^3He . Собственные механизмы релаксации в жидкой и газовой фазах намного слабее механизма релаксации через поверхностный адсорбированный слой. Предложена теоретическая модель релаксации в адсорбированном слое ^3He , учитывающая нитевидную структуру аэрогеля. Состоятельность предложенной модели релаксации будет проверена в планируемых экспериментах с аэрогелями, имеющими не нитевидную, а структуру конгломерата почти шарообразных частиц (“ball-like” структуру) [10, 11].

Таким образом, аэрогель является модельной системой, в которой релаксация заполняющего его жидкого или газообразного ^3He осуществляется только через адсорбированный поверхностный слой и в которой отсутствуют парамагнитные центры, влияющие на релаксацию ядерных спинов ^3He . Основываясь на данных экспериментах и внедряя каким-либо образом парамагнитные примеси в нити аэрогеля, можно исследовать влияние парамагнитных центров на спиновую кинетику ядер ^3He , что позволит более детально исследовать жидкий и газообразный ^3He в контакте с различными низкоразмерными субстратами.

Авторы выражают благодарность В.В. Дмитриеву за постоянный интерес к работе, Г.В. Мамину за помощь в приготовлении образцов, А.Н. Юдину за помощь в проведении измерений. Работа частично поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (# 09-02-01253).

1. V. V. Dmitriev, I. V. Kosarev, V. V. Zavjalov et al., *Physica B* **329-333**, 322 (2003).
2. T. Sato, T. Kunimatsu, K. Izumina et al., *Phys. Rev. Lett.* **101**, 055301 (2008).
3. G. V. Mamin, H. Suzuki, M. S. Tagirov et al., *Письма в ЖЭТФ* **79**, 778 (2004).
4. G. V. Mamin, M. S. Tagirov, D. A. Tayurskii et al., *Письма в ЖЭТФ* **84**, 43 (2006).
5. B. P. Cowan, *J. Low Temp. Phys.* **50**, 135 (1983).
6. S. Maegawa, A. Schuhl, M. W. Meisel et al., *Europhys. Lett.* **1**, 83 (1986).
7. Д. А. Таюрский, в печати.
8. P. C. Hammel and R. C. Richardson, *Phys. Rev. Lett.* **51**, 1441 (1984).
9. A. Abragam, in *The principles of nuclear magnetism*, Oxford University Press, 1961.
10. K. Kanamori, K. Nakanishi, K. Hirao et al., *Langmuir* **19**, 55581 (2003).
11. K. Kanamori, M. Aizawa, K. Nakanishi et al., *J. Sol-Gel Sci. Technol.* **48**, 172 (2008).