

Спиновая кинетика жидкого ^3He в контакте с микроразмерным порошком DyF_3 при ферромагнитном упорядочении ионов Dy^{3+}

Е. М. Алакшин⁺¹⁾, Е. И. Кондратьева^{+*}, В. В. Кузьмин⁺, К. Р. Сафиуллин^{+*}, А. А. Станиславовас⁺,
А. В. Савинков⁺, А. В. Клочков⁺, М. С. Тагиров^{+*}

⁺Казанский (Приволжский) федеральный университет, Институт физики, 420008 Казань, Россия

^{*}Институт перспективных исследований Академии наук Республики Татарстан, 420011 Казань, Россия

Поступила в редакцию 15 ноября 2017 г.

После переработки 29 ноября 2017 г.

Методом импульсного ядерно-магнитного резонанса (ЯМР) исследована спиновая кинетика жидкого ^3He в контакте со смесью микроразмерных порошков LaF_3 (99.67 %) и DyF_3 (0.33 %) при температурах 1.5–3 К. Соединение DyF_3 является дипольным диэлектрическим ферромагнетиком с температурой фазового перехода $T_c = 2.55$ К, в то время как диамагнитный фторид LaF_3 выступает в качестве разбавителя для оптимальных условий наблюдения ЯМР ^3He в порах порошка. Фазовый переход в DyF_3 сопровождается существенным изменением характера флуктуаций магнитных моментов ионов диспрозия, к которым чувствительна спиновая кинетика ^3He , находящегося в контакте с субстратом. Обнаружено существенное изменение скоростей релаксации продольной и поперечной ядерной намагниченности ^3He в области магнитного упорядочения в твердотельной матрице. Предложена методика изучения статических и флуктуирующих магнитных полей твердотельной матрицы при низких температурах с использованием жидкого ^3He в качестве зонда.

DOI: 10.7868/S0370274X1802008X

Обнаруженное более пятидесяти лет назад аномально малое тепловое сопротивление (сопротивление Капицы) на границе жидкого ^3He с парамагнитным церий-магниевым нитратом при $T = 10$ мК [1, 2] стимулировало активное исследование магнитных свойств жидкого ^3He , граничащего с твердым телом. В ходе этих исследований был получен большой объем экспериментальных данных, касающихся как магнетизма поверхностного ^3He , так и механизмов магнитных взаимодействий на границе жидкий ^3He – твердое тело. В ряде экспериментов было надежно установлено существование диполь-дипольного взаимодействия между ядерными спинами жидкого ^3He и ядерными и/или электронными спинами твердотельных субстратов [3–8].

Резонансное взаимодействие ядер ^{169}Tm и ^3He на границе раздела твердое тело (этилсульфат тулия) – жидкость, проявляющееся в процессах кросс-релаксации, впервые наблюдалось в 1984 году [9]. Позже методами импульсного ЯМР была обнаружена резонансная магнитная связь между ядрами жидкого ^3He и ядрами ^{141}Pr ван-флековского парамагнетика PrF_3 , представляющего собой мелкодисперсный порошок [10]. Кроме того, была выполнена серия ра-

бот по исследованию ЯМР ^3He в контакте с наноразмерными порошками PrF_3 и LaF_3 [11–13]. Влияние ядерных спинов ^3He на резонансные характеристики твердотельных образцов было изучено группой Салливана на примере металлической сурьмы [14, 15].

В литературе приводится лишь единичный случай наблюдения влияния магнитного фазового перехода в твердотельном субстрате на ядерную магнитную релаксацию ядер ^3He [16]. Эксперименты проводились методом стационарного ЯМР, а в качестве образца выступал моногидрат сульфата тетраамминмеди (II) $\text{Cu}(\text{NH}_3)_4\text{SO}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$, в котором переход из парамагнитного в антиферромагнитное состояние имеет место при температуре $T_N = 0.43$ К. Автором было показано, что вследствие взаимодействия ядер ^3He с магнитными моментами ионов меди при температуре фазового перехода наблюдается максимум скорости продольной релаксации намагниченности ядер ^3He .

Теоретическое исследование спин-решеточной релаксации ядер нормального жидкого ^3He , взаимодействующих с электронными магнитными моментами в подложке, представлено в работах [17, 18]. Значительные акценты уделены различиям в скорости релаксации в случаях, когда две спиновые системы связаны дипольным либо изотропным обменным взаи-

¹⁾e-mail: alakshin@gmail.com

модействиями, и движению ядер ^3He в неоднородных магнитных полях, индуцированных электронными спинами, локализованными в твердом теле.

В настоящей работе проведено экспериментальное исследование влияния фазового перехода в дипольное ферромагнитное состояние в микроразмерном порошке DyF_3 ($T_c = 2.55\text{ K}$ [19]) на процессы ядерной магнитной релаксации жидкого ^3He .

Эксперименты ЯМР проводились на импульсном спектрометре лабораторного изготовления [20] при температурах 1.5–3 К во внешнем магнитном поле 0.2–0.6 Тл. Низкие температуры достигались при помощи откачки паров жидкого ^4He . Образец помещался в ампулу из пирекса (внутренний диаметр 6 мм), ампула герметично соединялась с системой газовых коммуникаций ^3He . Концентрация примеси ^4He в ^3He не превышала 0.018 %. Непосредственно перед каждым экспериментом образец подвергался многократной циклической промывке газообразным ^4He при температуре 370 К с последующей откачкой до давления 10^{-2} мбар. Соленоидальная однослойная медная катушка длиной 9 мм была намотана с шагом через виток на поверхность ампулы. Толщина медного провода составляла 0.25 мм. Согласование с приемно-передающим трактом спектрометра ЯМР осуществлялось по емкостной схеме с согласующим и подстроечным конденсаторами, вынесенными за пределы криостата для возможности перестройки частоты во время эксперимента.

В качестве образцов использовались смеси микроразмерных порошков LaF_3 и DyF_3 с размером частиц 1–45 мкм. Образец был получен путем помола шихты DyF_3 в ступке и просеивания через металлическое сито с размером ячейки 45 мкм. Микроразмерный порошок LaF_3 был получен аналогичным образом путем помола монокристалла LaF_3 , выращенного Р.Ю. Абдулсабировым в НИЛ МРС и КЭ КГУ. Смеси образцов были изготовлены путем перемешивания необходимого количества LaF_3 и DyF_3 до однородного состояния. Полученное при помощи микроскопа распределение частиц по размерам имеет максимум в диапазоне 1–3 мкм и характерный размер пор в порошке менее 1 мкм.

Измерения скорости спин-решеточной релаксации $1/T_1$ ядер ^3He были выполнены методом “насыщение–восстановление” посредством детектирования амплитуды спинового эхо ($\pi/2-t-\pi/2-60\text{ мкс}-\pi$, длительность $\pi/2$ импульса составляла 3 мкс), времена спин-спиновой релаксации измерялись по методике Хана. Зависимости продольной и поперечной намагниченности от времени задержки t между насыщающим и детектирующим импульсами были аппроксимированы одно-экспоненциальными функци-

ями. Эксперименты были выполнены при температуре образцов от 1.5 до 3 К, которую измеряли по калиброванному угольно-композитному сопротивлению фирмы Allen-Bradley, находящемуся в непосредственной близости с образцом.

Основные результаты, представленные в данной работе, получены для образца, состоящего из смеси LaF_3 (99.67 %) и DyF_3 (0.33 %). Предварительные эксперименты по исследованию температурной зависимости скоростей спин-решеточной и спин-спиновой релаксаций ядер ^3He в контакте с микроразмерным порошком DyF_3 (100 %) показали, что сигнал спинового эхо жидкого ^3He крайне мал (особенно выше T_c). В связи с этим было решено заменить часть DyF_3 на его диамагнитный аналог LaF_3 . Однако в образцах LaF_3 (93 %) + DyF_3 (7 %) и LaF_3 (99 %) + DyF_3 (1 %) также не удавалось детектировать сигнал в полях выше 250 мТл, хотя соотношение сигнал/шум было увеличено и составило 1:1 при температуре 2.8 К для образца с содержанием DyF_3 (7 %). Переход к системе LaF_3 (99.67 %) + DyF_3 (0.33 %) позволил значительно увеличить сигнал ^3He (сигнал/шум 5:1) и наблюдать ЯМР в широком диапазоне магнитных полей.

Температурные зависимости скоростей спин-решеточной и спин-спиновой релаксации ядер ^3He в контакте со смесью микроразмерных порошков LaF_3 + DyF_3 представлены на рис. 1 и 2.

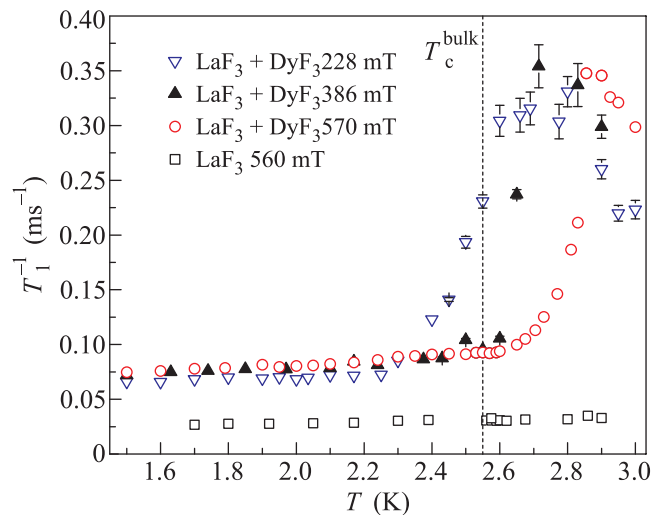


Рис. 1. (Цветной онлайн) Температурные зависимости скоростей спин-решеточной релаксации ^3He в системе (^3He -смесь микроразмерных порошков LaF_3 (99.67 %) + DyF_3 (0.33 %)) в магнитных полях: ∇ – 228 мТл (7.4 МГц), \blacktriangle – 386 мТл (12.6 МГц), \circ – 570 мТл (18.5 МГц). \square – ^3He в контакте с LaF_3 (100 %) в поле 560 мТл. Пунктирная линия – температура фазового перехода в монокристалле DyF_3

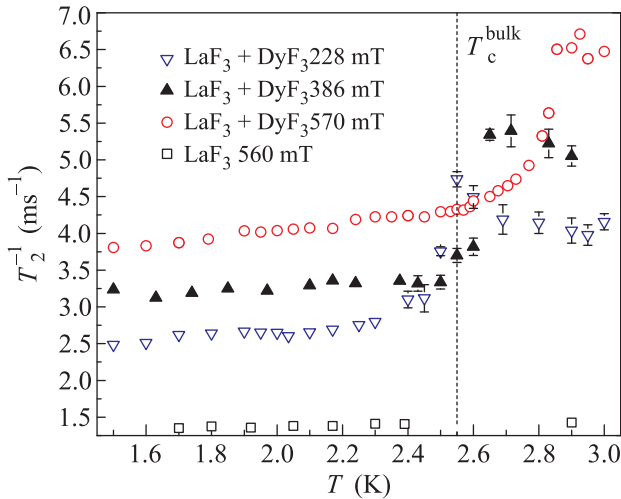


Рис. 2. (Цветной онлайн) Температурные зависимости скоростей спин-спиновой релаксации ^3He в системе (^3He -смесь микроразмерных порошков LaF_3 (99.67%) + DyF_3 (0.33%)) в магнитных полях: ∇ – 228 мТл, \blacktriangle – 386 мТл, \circ – 570 мТл. \square – ^3He в контакте с LaF_3 (100%) в поле 560 мТл. Пунктирная линия – температура фазового перехода в монокристалле DyF_3

но вследствие различий скоростей флуктуаций магнитных моментов ионов диспрозия в порошке DyF_3 выше и ниже T_c . При возрастании температуры в районе T_c наблюдалось резкое уменьшение амплитуды сигнала спинового эхо ^3He приблизительно в 7 раз (сравнение проводилось при экстраполяции амплитуд сигнала спинового эхо к нулевой задержке). Ширина сигнала спинового эхо фиксированной напряженности магнитного поля не зависела от температуры.

В температурных зависимостях скоростей релаксации ядер ^3He наблюдается максимум вблизи T_c , положение которого зависит от значения внешнего магнитного поля. Полевая зависимость положения максимума скорости спин-решеточной и спин-спиновой релаксации ядер ^3He в системе представлена на рис. 3. При увеличении внешнего магнитного поля положение максимума смещается в область более высоких температур.

Совокупность полученных экспериментальных данных может быть объяснена в рамках следующей модели. Релаксация ^3He в данной системе может осуществляться благодаря двум механизмам. Частота некоррелированных флуктуаций магнитных моментов ионов Dy^{3+} в парамагнитной фазе субстрата при приближении к температуре перехода в магнито-упорядоченную ферромагнитную фазу уменьшается и при $T < T_c$ флуктуации магнитных моментов становятся коррелированными, что сопровождается дальнейшим понижением частоты флуктуаций. При совпадении частоты флуктуаций с ларморовской частотой ядер ^3He происходит ускорение продольной ядерной магнитной релаксации. Можно ожидать, что при увеличении магнитного поля и соответствующем размывании температуры фазового перехода данное совпадение будет наблюдаться при более высоких температурах вследствие увеличения радиуса корреляции намагниченности. Изменение амплитуды сигнала спинового эхо ядер ^3He в настоящий момент не имеет объяснения. Аномалия в поведении величины ЯМР-сигнала ^3He также наблюдалась в работе [16].

Второй возможный механизм релаксации связан с диффузией ^3He в неоднородных полях, который должен быть доминирующим при $T < T_c$ из-за замедления времени корреляции электронных спинов в DyF_3 . Оценить скорость ядерной спин-решеточной релаксации ^3He можно по формуле [21]:

$$T_1^{-1} = D \frac{|\nabla|^2}{B_0^2}, \quad (1)$$

где $D = 6.4 \cdot 10^{-5} \text{ см}^2/\text{с}$ – коэффициент спиновой диффузии жидкого ^3He в рассматриваемом диапазоне температур, ∇ – градиент локального магнитно-

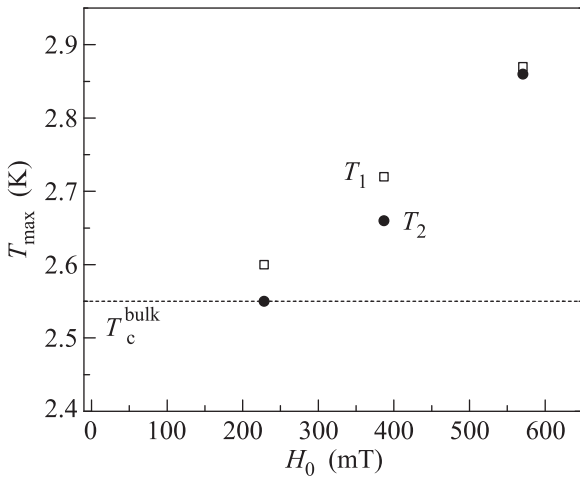


Рис. 3. Полевая зависимость положения максимума скорости спин-решеточной (\square) и спин-спиновой релаксации (\bullet) ^3He в системе (^3He -смесь микроразмерных порошков LaF_3 (99.67%) + DyF_3 (0.33%))

В случае диамагнитного порошка LaF_3 (100%) характерные времена релаксации в рассмотренном интервале температур порядка $T_1 \sim 35 \text{ мс}$, $T_2 \sim 0.4 \text{ мс}$. В экспериментах со смесью LaF_3 (99.67%) и DyF_3 (0.33%) времена релаксации намного короче, что говорит о том, что основным источником релаксации является фторид диспрозия DyF_3 , несмотря на его малую концентрацию. Характер температурных зависимостей также меняется принципиаль-

го поля на ядрах ${}^3\text{He}$, перпендикулярного внешнему магнитному полю B_0 .

По оценкам на расстоянии в 2 мкм от поверхности частицы DyF_3 время спин-решеточной релаксации ядер ${}^3\text{He}$ составляет несколько миллисекунд. Величина градиента оценивалась, исходя из характерного размера частиц, плотности DyF_3 и магнитного момента иона Dy^{3+} [19]. Таким образом, ядерная спин-решеточная релаксация ${}^3\text{He}$ определяется быстрой релаксацией вблизи поверхности частиц DyF_3 и спиновой диффузией удаленных ядер ${}^3\text{He}$ до поверхности частиц DyF_3 .

Оценить диффузионную длину перемещения атома ${}^3\text{He}$ за наблюдаемое время релаксации T_1 можно по формуле:

$$R = \sqrt{6DT_1}. \quad (2)$$

Оценки показывают, что $R_{T>T_c} = 14$ мкм ($T = 2.9$ К) и $R_{T<T_c} = 24$ мкм ($T = 2$ К), что показывает состоятельность предложенной модели.

Скорость ядерной спин-спиновой релаксации ${}^3\text{He}$, находящегося в неоднородных магнитных полях в ограниченной геометрии, можно оценить по формуле [22]:

$$T_2^{-1} = \frac{\gamma^2 G_z^2 a^4}{120D}, \quad (3)$$

где γ – гиромангнитное отношение, G_z – градиент z -компоненты постоянного магнитного поля, a – характерный зазор между порошинками.

По оценкам на расстоянии 6 мкм от поверхности частицы DyF_3 и характерном зазоре между порошинками $a = 0.5$ мкм, время спин-спиновой релаксации ядер ${}^3\text{He}$ составляет сотни микросекунд, что показывает эффективность данного механизма. Кроме этого, как и в случае с продольной релаксацией, флуктуации магнитных моментов ионов Dy^{3+} должны приводить к увеличению скорости поперечной релаксации вблизи T_c .

При переходе к наноразмерным частицам DyF_3 , варьируя их размеры, концентрацию в смеси с LaF_3 и диффузию газообразного ${}^3\text{He}$ при различных давлениях, можно более детально выяснить эффективность рассмотренных выше механизмов ядерной магнитной релаксации в жидком ${}^3\text{He}$. Данную методику измерений времен релаксации ядер ${}^3\text{He}$ можно использовать для изучения магнитных фазовых переходов при низких температурах в наноразмерных системах.

Авторы благодарны профессору Б.З. Малкину за плодотворное обсуждение результатов и ценные замечания. Работа выполнена за счет средств гранта РФФИ (проект # 16-32-60155 мол_а_дк).

1. W.R. Abel, A.C. Anderson, W.C. Black, and J.C. Wheatley, *Phys. Rev. Lett.* **15**, 875 (1965).
2. W.R. Abel, A.C. Anderson, W.C. Black, and J.C. Wheatley, *Phys. Rev. Lett.* **16**, 273 (1966).
3. L.J. Friedman, P.J. Millet, and R.C. Richardson, *Phys. Rev. Lett.* **47**, 1078 (1981).
4. L.J. Friedman, T.J. Gramila, and R.C. Richardson, *J. Low Temp. Phys.* **55**, 83 (1984).
5. И.С. Солодовников, Н.В. Заварицкий, *Письма в ЖЭТФ* **56**, 165 (1992).
6. И.С. Солодовников, Н.В. Заварицкий, *ЖЭТФ* **106**, 489 (1994).
7. R.W. Singerman, F.W. Van Keuls, and R.C. Richardson, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 2789 (1994).
8. F.W. Van Keuls, R.W. Singerman, and R.C. Richardson, *J. Low Temp. Phys.* **96**, 103 (1994).
9. А.В. Егоров, Ф.Л. Аухадеев, М.С. Тагиров, М.А. Теплов, *Письма в ЖЭТФ* **39**, 480 (1984).
10. А.В. Егоров, Д.С. Ирисов, А.В. Клочков, А.В. Савинков, К.Р. Сафуллин, М.С. Тагиров, Д.А. Тайурский, and А.Н. Юдин, *JETP Lett.* **86**(6), 416 (2007).
11. М.С. Тагиров, Е.М. Алакшин, Р.Р. Газизулин, А.В. Егоров, А.В. Клочков, С.Л. Коралева, В.В. Кузьмин, А.С. Низамутдинов, К. Кано, А. Накао, and А.Т. Губаидуллин, *J. Low Temp. Phys.* **162**, 645 (2011).
12. Е.М. Алакшин, А.М. Газизулina, Р.Р. Газизулин, А.В. Клочков, Т.Р. Сафин, К.Р. Сафуллин, М.С. Тагиров, and М.Ю. Захаров, *J. Phys.: Conf. Ser.* **568**, 012001 (2014).
13. Е.М. Алакшин, Р.Р. Газизулин, А.М. Газизулina, А.В. Клочков, С.Б. Орлинский, А.А. Родионов, Т.Р. Сафин, К.Р. Сафуллин, М.С. Тагиров, and М.Ю. Захаров, *Low Temp. Phys.* **41**, 47 (2015).
14. E.B. Genio, J. Xu, N.S. Sullivan, and G.G. Ihas, *Czechoslovak J. Phys.* **46**(1), 219 (1996).
15. E.B. Genio, G.G. Ihas, and N.S. Sullivan, *J. Low Temp. Phys.* **112**(1–2), 21 (1998).
16. S. Saito, *Phys. Rev. Lett.* **36**, 975 (1976).
17. M.T. Beal-Monod and D.L. Mills, *J. Low Temp. Phys.* **30**, 289 (1978).
18. R.C. Albers and J.W. Wilkins, *J. Low Temp. Phys.* **34**, 105 (1979).
19. А.В. Савинков, С.Л. Коралева, А.А. Родионов, I.N. Kurkin, B.Z. Malkin, M.S. Tagirov, H. Suzuki, K. Matsumoto, and S. Abe, *J. Phys. Cond. Matter* **20**(48), 485220 (2008).
20. Е.М. Алакшин, Р.Р. Газизулин, А.В. Клочков, В.В. Кузьмин, А.М. Сабитова, Т.Р. Сафин, and М.С. Тагиров, *Magn. Reson. Solids* **15**, 13104 (2013).
21. C.P. Lusher, M.F. Seeca, and M.G. Richards, *J. Low Temp. Phys.* **72**, 25 (1988).
22. R.C. Wayne and R.M. Cotts, *Phys. Rev.* **151**, 264 (1966).