

## ПРОЦЕССЫ РЕЛАКСАЦИИ И ЭФФЕКТЫ ДИСКРЕТНОГО НАСЫЩЕНИЯ В СПЕКТРЕ ЭПР $\text{Nd}^{3+}$ В $\text{Ca}_5(\text{PO}_4)_3\text{F}$

Д.М.Дараселия, Г.В.Максимова, А.А.Маненков

Мы исследовали спектры ЭПР и процессы релаксации ионов  $\text{Nd}^{3+}$  в монокристаллах фтороапатита (ФАП) –  $\text{Ca}_5(\text{PO}_4)_3\text{F}$ <sup>1)</sup>. При этом были обнаружены эффекты дискретного насыщения (ДН) и исследована динамика этого эффекта, которая до сих пор по существу не изучалась, и которая важна для понимания как природы эффекта, так и его связи с характером уширения линии и процессами релаксации.

Измерения проводились на монокристаллах с концентрацией  $\text{Nd}^{3+}$  от 0,02 до 0,68 ат.% в области температур 1,7° + 12°К на частоте 9,34 ГГц.

Было обнаружено, что в кристалле имеется три магнитно-неэквивалентных комплекса  $\text{Nd}^{3+}$ . Спектр каждого комплекса в области полей до 8 кГс хорошо описывается аксиальным спин-гамильтонианом с эффективным спином  $S' = 1/2$ . Мы определили параметры гамильтониана:  $g_z = 6,02 \pm 0,02$ ,  $g_x = g_y = 0,18 \pm 0,02$  и нашли, что оси комплексов образуют между собой угол в 120° в плоскости, перпендикулярной оси с кристалла. Ширина линии, также как и спектр, сильно анизотропны: она минимальна в z-ориентации ( $\sim 60$  Гц при концентрации 0,68%  $\text{Nd}^{3+}$ ) и значительно увеличивается по мере приближения к перпендикулярной ориентации.

<sup>1)</sup> В недавно появившихся работах [1, 2] было сообщено об оптических спектрах и лазерной генерации на этом новом кристалле.

При исследовании релаксаций методом импульсного насыщения было обнаружено, что восстановление населенностей  $n$  после насыщения линии не является одноэкспоненциальным и в большинстве случаев удовлетворительно описываются суммой двух экспонент  $\Delta n = \Delta n_{\text{равнов.}} + A \exp(-t/\tau_1) + B \exp(-t/\tau_2)$ . С укорочением насыщающего импульса ( $t \lesssim 10 \text{ мсек}$ ) вес медленной экспоненты с характеристическим временем  $\tau_2$  существенно уменьшается, что указывает на заметную роль процессов кроссрелаксации [3]. Мы предполагаем, что эта экспонента соответствует спин-решеточной релаксации, тогда как более быстрая связана с процессами кроссрелаксации внутри неоднородно уширенной линии.

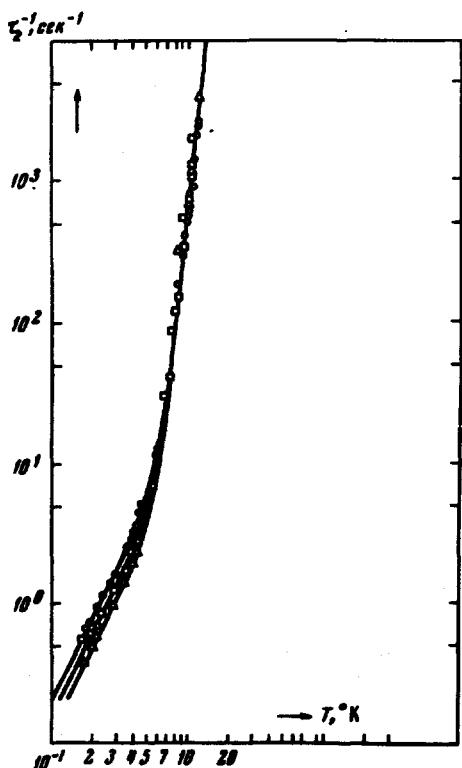


Рис. 1. Температурные зависимости скоростей спин-решеточной релаксации  $\text{Nd}^{3+}$  в ФАП  $\circ - 0,68\%$ ,  
 $\tau_2^{-1} = 0,2 T^2 + 5,2 \cdot 10^{-7} T^9$ ;  $\square - 0,4\%$ ,  
 $\tau_2^{-1} = 0,155 T^2 + 5,2 \cdot 10^{-7} T^9$ ;  
 $\Delta = 0,14\%$ ,  $\tau_2^{-1} = 0,125 T^2 + 5,2 \cdot 10^{-7} T^9$ ;  
 $\nu = 9,34 \text{ Гц}$ ,  $H = 7 \text{ кз}$

Измерения температурных зависимостей скоростей релаксации в поле  $H = 7 \text{ кз}$  для образцов с различной концентрацией  $\text{Nd}^{3+}$  показали (см. рис. 1), что в области  $1,7 \div 4^\circ\text{K}$   $\tau_2^{-1} \sim T^2$ , а при более высоких температурах (до  $12^\circ\text{K}$ )  $\tau_2^{-1} \sim T^9$ . Эффективность рамановского процесса ( $\tau_2^{-1} \sim T^9$ ) и отсутствие процессов релаксации через промежуточные уровни [4] свидетельствует о том, что возбужденные уровни  $\text{Nd}^{3+}$  в ФАП лежат далеко. Действительно, из оптических данных [1] следует, что первый возбужденный уровень  $\text{Nd}^{3+}$  отстоит от основного на

$400 \text{ см}^{-1}$ . Остается пока неясной природа обнаруженной в области  $1,7 + 4^\circ\text{K}$  зависимости  $\tau_2^{-1} \sim T^2$ . Такая зависимость обычно связана с эффектом нагревания фононов, однако относительно малая концентрация  $\text{Nd}^{3+}$  в исследованных образцах, а также ход концентрационной зависимости делают такое предположение маловероятным.

Для выяснения природы кроссрелаксации мы изучали характер уширения линий с помощью методики "выжигания дыр". Часть линии ЭПР насыщалась импульсом СВЧ при одновременной магнитной развертке с частотой  $50 \text{ Гц}$ . Наблюденная при этом "дыра" в линии свидетельствует о неоднородном уширении, связанном, очевидно, с разбросом величин компонент или осей локальных  $g$ -тензоров из-за неоднородности кристалла.

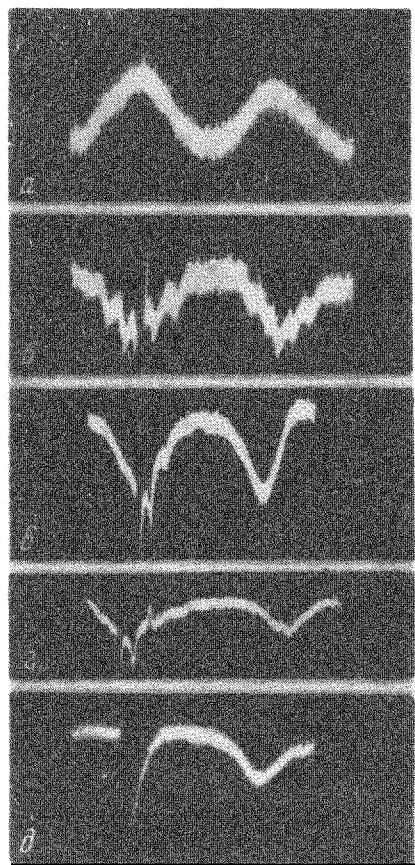


Рис. 2. Осциллограммы картины ДН в образцах с различной концентрацией  $\text{Nd}^{3+}$  (С в ат.%). Развертка осциллографа линейная, длительность —  $20 \text{ мсек}$ . Модуляция магнитного поля — синусоидальная. *a* — Часть вершины линии ЭПР  $\text{Nd}^{3+}$  в отсутствие насыщающего импульса, *b* — *d* — та же часть линии при импульсном насыщении ( $r = 50+100 \text{ мксек}$ ). *b* —  $C = 0,02\%$ , *c* —  $C = 0,14\%$ , *d* —  $C = 0,4\%$ , *d* —  $C = 0,68\%$ , ДН не наблюдается

Более детальное исследование эффекта "выжигания дыр" показало, что при определенных условиях последние имеют характерную структуру. При длительностях насыщающего импульса от десятков до сотен микросекунд в образцах с малой концентрацией  $\text{Nd}^{3+}$  на контуре выжигаемой "дыры" появляются пять симметрично расположенных "дырок".

Расстояние между крайними "дырками"  $\sim 45 \text{ \AA}$ , между средними  $\sim 20 \text{ \AA}$  (в поле  $H \sim 7 \text{ к} \cdot \text{с}$ ) (см. рис. 2, б). В слабых полях около  $2 \text{ к} \cdot \text{с}$  структура "дыры" исчезает. Аналогичные эффекты выжигания нескольких "дырок" в неоднородно уширенных линиях ранее наблюдались рядом авторов [5-8] и связаны с разрешением суперверхтонкой структуры линий при импульсном насыщении "запрещенных" переходов. Следуя [8], мы будем называть их эффектами дискретного насыщения (ДН).

Мы обнаружили важные особенности эффекта ДН. Он существенно зависит от концентрации парамагнитных ионов: эффект наблюдался только в образцах с малой концентрацией  $Nd^{3+}$  ( $< 0,4\%$ ). Это объясняется заплыванием картины ДН вследствие кроссрелаксации внутри линии, которая становится эффективнее с ростом концентрации. Рис. 2 б – 2 д иллюстрируют заплывание картины ДН с увеличением концентрации  $Nd^{3+}$ .

Другой особенностью является тот факт, что при перемещении насыщающего импульса по контуру линии вслед за ним движется как целое и вся система "дырок". Это указывает на двоякую природу уширения линии ЭПР в ФАП: за счет локальной неоднородности кристаллического поля и из-за неразрешенной суперверхтонкой структуры, обусловленной взаимодействием  $Nd^{3+}$  с ближайшими ядрами ( $F^{19}$  или  $P^{31}$ ).

Физический институт

им. П.Н.Лебедева

Академии наук СССР

Поступила в редакцию

5 августа 1969 г.

### Литература

- [1] R.C.Ohlman, K.B.Stainbriegge, R.Mazelsky. *Appl. Optics*, 7, 905, 1968.
- [2] В.М.Брук, Ю.К.Воронъко, Г.В.Максимова, В.В.Осико, А.М.Прохоров, К.Ф.Шипилов. Письма в ЖЭТФ, 8, 357, 1968.
- [3] А.А.Маненков, А.М.Прохоров. ЖЭТФ, 42, 75, 1962.
- [4] А.А.Маненков, А.М.Прохоров. ЖЭТФ, 42, 1371, 1962; R.Orbach, Proc. Roy. Soc., A264, 458, 1961.
- [5] G.Feber, E.A.Gere. *Phys. Rev.*, 114, 1245, 1959.
- [6] И.И.Бекаури, Б.Г.Берулава, Т.И.Санадзе, О.Г.Хаханашвили. ЖЭТФ, 52, 447, 1967.
- [7] Н.А.Ефремов, М.А.Кожушнер, В.Н.Соколов. Письма в ЖЭТФ, 7, 472, 1968.
- [8] Т.И.Санадзе, Г.Р.Хуцишвили. Письма в ЖЭТФ, 8, 376, 1968; ЖЭТФ, 56, 454, 1969.