

СПИН-РЕШЕТОЧНАЯ РЕЛАКСАЦИЯ В ТВЕРДОМ ^3He В СЛАБЫХ МАГНИТНЫХ ПОЛЯХ

*И. С. Солодовников**

*Институт физических проблем им. П. Л. Капицы Российской академии наук
113307, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 7 декабря 2001 г.

В твердом ^3He при температурах от 0.22 до 0.73 К в магнитном поле 44 Э проведены измерения времени T_1 спин-решеточной релаксации. Возрастание величин T_1 при температурах выше примерно 0.4 К связывается с включением вакансионного механизма подвижности атомов в кристалле. В рамках модели узкой энергетической зоны получены величины энергии активации вакансий. В точке минимума на кривой плавления в области доминирования обменных процессов движения атомов в кристалле проведены измерения T_1 в зависимости от магнитного поля в диапазоне полей от 2 до 71 Э. Данные, полученные для полей свыше 5 Э, согласуются с теорией Кована и Фардиса.

PACS: 67.80.Jd, 67.80.Mg, 76.60.Es

1. ВВЕДЕНИЕ

Вопрос о вакансиях в кристаллах ^3He изучается во многих работах [1–5]. Данные для концентрации вакансий и их энергии образования, полученные различными способами для кристаллов ^3He с высокими температурами плавления, — выше примерно 1 К — согласуются между собой [6]. Для кристаллов меньшей плотности наиболее прямой способ исследования вакансий с помощью рентгеноструктурных измерений [1] оказывается затрудненным из-за малой концентрации вакансий. Величины энергии образования вакансий, полученные в работе [1] для кристаллов с температурами плавления ниже примерно 0.6 К, оказываются заниженными по данным более поздних работ [2]. В работе [3] вакансии наблюдались по увеличению давления при нагреве кристалла постоянной плотности. Наиболее поздние данные, имеющиеся в литературе, получены по измерениям скорости движения пористой мембраны [4] и по подвижности отрицательных зарядов [5]. Модель, рассматривающая движение зарядов в твердом ^3He с точки зрения энергетической зонной структуры вакансий, предложена в работе [7]. Данные, приводи-

мые различными авторами для подвижности вакансий в кристалле и для ширины зоны вакансионных, имеют большой разброс [8].

Эксперименты по ЯМР в кристаллах позволяют регистрировать вакансии по их подвижности [9]. Особенностью твердого ^3He является наличие обменных процессов атомного движения, скорость которых не зависит от температуры и быстро увеличивается с уменьшением плотности кристалла. Измерения времени спин-решеточной релаксации T_1 в твердом ^3He позволяют получить информацию о подвижности атомов в кристаллической решетке и дают возможность наблюдать вакансии либо в «высокотемпературном», либо в «низкотемпературном» режиме [2]. В низкотемпературном режиме, при $T \simeq 0.2$ К, в достаточно сильных магнитных полях вакансии определяют скорость спиновой релаксации, обуславливая связь обменного энергетического резервуара с решеткой [2, 6]. Авторы работы [10], анализируя полученные ими в низкотемпературном режиме данные для T_1 , пришли к выводу, что энергия образования вакансий убывает до нуля в пределе наименьшей плотности кристалла; этот результат не подтверждается в более поздних работах. По-видимому, обработка данных для T_1 в низкотемпературном режиме для кристаллов малой плот-

*E-mail: solodov@kapitza.ras.ru

ности [10] оказывается затрудненной из-за уменьшения температуры до температуры плавления, а также, возможно, из-за неэкспоненциального (двухвременного) характера спин-решеточной релаксации в этом режиме.

При более высоких температурах, в «промежуточной» и «высокотемпературной» областях, релаксация спинов обусловлена модуляцией диполь-дипольных взаимодействий движением атомов в кристалле [6]. В области температур ниже приблизительно 0.6 К подвижность атомов твердого ${}^3\text{He}$ определяется главным образом обменными процессами, представляющими собой квантовомеханическое тунелирование двух или более атомов через энергетические барьеры кристаллической решетки. Поэтому в промежуточной области температур, примерно от 0.2 до 0.6 К, время спиновой релаксации не зависит от температуры — наблюдается «обменное плато». В высокотемпературном режиме скорость движения атомов в кристалле, вызванная подвижностью вакансий, превышает скорость обменных процессов. В этих условиях спин-решеточная, спин-спиновая релаксация и спиновая диффузия определяются вакансиями; эксперименты, в которых были измерены эти величины, выполнены Райхом [11]. При этом для получения информации о вакансиях обычно используются результаты измерений времени спин-решеточной релаксации T_1 в сильных магнитных полях [2]. По-видимому, при анализе результатов экспериментов по измерению T_1 в высокотемпературном режиме, проведенных в сильных магнитных полях, возникает трудность, связанная со сложной, немонотонной температурной зависимостью T_1 [12]: с ростом температуры выше области плато время T_1 вначале убывает, затем начинает возрастать. В литературе имеются, насколько нам известно, экспериментальные данные для энергии образования вакансий, полученные в высокотемпературном режиме лишь для кристаллов с температурой плавления выше 1.2 К [13, 14]. Для менее плотных кристаллов по мере уменьшения температуры плавления область чистого вакансионного высокотемпературного режима постепенно становится слишком малой и затем исчезает вовсе. Поэтому, на наш взгляд, представляет интерес провести измерения времени спин-решеточной релаксации в области более низких температур, соответствующих началу перехода от режима обменного плато к высокотемпературному вакансионному режиму. В настоящей работе проведены измерения T_1 в этой переходной области температур в слабом магнитном поле для кристаллов ${}^3\text{He}$ с наименьшими плотностями.

2. МОДЕЛЬ РЕЛАКСАЦИИ

Скорость релаксации спинов в твердых телах с быстрым молекулярным движением может быть описана соотношением теории Бломберге-на–Парселла–Паунда (БПП) [2, 6, 15]:

$$T_1^{-1} = \frac{2M_2\tau_c}{3} \left(\frac{1}{1 + \omega_0^2\tau_c^2} + \frac{4}{1 + 4\omega_0^2\tau_c^2} \right) \quad \text{при } \tau_c\sqrt{M_2} \ll 1, \quad (1)$$

где $\omega_0 = \gamma H_0$ — ларморовская частота (γ — гиромагнитное отношение), M_2 — второй момент Ван-Флека жесткой решетки, определяемый дипольными полями, τ_c^{-1} — частота модуляции диполь-дипольных взаимодействий атомным движением. Для поликристалла объемно-центрированной кубической фазы и спина 1/2 второй момент $M_2 = 3.27\gamma^4\hbar^2 n^2$, где n — концентрация спинов. Для слабых магнитных полей H_0 при $\omega_0\tau_c \ll 1$

$$T_1 = 0.3 \frac{1}{\tau_c M_2}. \quad (2)$$

В слабых магнитных полях уменьшение характерного времени атомного движения τ_c при нагреве кристалла приводит к увеличению времени спин-решеточной релаксации. Для твердого ${}^3\text{He}$ модель БПП обычно используется для описания спиновой релаксации в высокотемпературном вакансионном режиме [2]; мы будем предполагать, что соотношение (2) в пределе слабых магнитных полей справедливо и для области более низких температур, где существенны обменные процессы. В кристаллическом ${}^3\text{He}$ движение атомов обусловлено квантовомеханическими обменными процессами и подвижностью вакансий:

$$\tau_c^{-1} = \omega_e + \alpha x \omega_v, \quad (3)$$

где ω_e описывает частоту обменных движений в отсутствие вакансий (для простоты опускаем числовой коэффициент перед ω_e порядка единицы), x — относительная концентрация вакансий, ω_v — частота прыжка вакансии в один из соседних узлов решетки. Эти частоты имеют порядок величины $\omega_e \sim 10^8 \text{ с}^{-1}$, $\omega_v \sim 10^{10} \text{ с}^{-1}$ [6]. Числовой коэффициент α может быть определен в рамках конкретной модели движения вакансий; авторы [6, 13] полагают $\alpha \approx 10$. Мы считаем, что все вакансии неупорядоченно движутся по кристаллу; при этом не учитывается возможность того, что низкоэнергетичные вакансии вблизи дна зоны могут локализоваться в решетке с образованием магнитного полярона [8, 16]. Как и в [6], мы

полагаем, что движение вакансий в кубической фазе твердого ${}^3\text{He}$ происходит с помощью туннелирования без термоактивационного преодоления барьера, при этом частота ω_v не зависит от температуры. Мы также не рассматриваем возможного влияния вакансий, возникающих при нагреве кристалла, на скорость обменных процессов движения атомов. Замедление обменных процессов, которое могло бы быть вызвано эффективным уплотнением кристалла при появлении в нем вакансий, по-видимому, пропорционально концентрации вакансий и может быть включено в последнее слагаемое (3). Магнитное поле можно считать слабым при $H_0 \ll \omega_e/\gamma \sim 5$ кЭ. В слабых магнитных полях из-за малости теплоемкости зеемановского энергетического резервуара по сравнению с обменным резервуаром низкотемпературный вакансионный режим на зависимости $T_1(T)$ не наблюдается, и обменное плато сохраняется вплоть до самых низких температур — до температуры плавления.

Будем следовать модели узкой энергетической зоны вакансионных состояний, которую обычно [13, 14] используют при рассмотрении результатов экспериментов в высокотемпературном вакансионном режиме. При этом ширина энергетической зоны вакансионных (выраженная в градусах) предполагается много меньше температуры, и температурную зависимость концентрации вакансий описывают законом Аррениуса $x = \exp(-\Phi/T)$, где энергия активации Φ равна энергии образования вакансии в центре узкой зоны. Для времени релаксации спинов получаем в этом приближении

$$T_1 = T_e + T_0 \exp(-\Phi/T). \quad (4)$$

Первое слагаемое (4) не зависит от температуры и соответствует области низкотемпературного обменного плато, второе слагаемое описывает увеличение T_1 при росте температуры вплоть до точки плавления. Полученные в настоящей работе зависимости времени T_1 от температуры используются для определения энергии активации вакансий Φ и предэкспоненциального множителя T_0 , имеющего размерность времени, по величине которого по соотношению $T_0 = 0.3\alpha\omega_v/M_2$ можно оценить частоту движения вакансий и сделать оценку ширины энергетической зоны, соответствующей вакансиям. Время T_e в уравнении (4) характеризует обменные процессы и зависит только от плотности кристалла. По данным работ [10, с. 66; 17, с. 216] частота обменного взаимодействия зависит от плотности как $\omega_e \propto V_m^{18}$, где V_m — молярный объем кристалла. Сильная степенная зависимость связана с быстрым замедлени-

ем обменных процессов с ростом плотности твердого ${}^3\text{He}$. Так как $M_2 \propto V_m^{-2}$, то $T_e \propto V_m^{20}$. По измерениям, выполненным Деворе и др. [18], в области обменного плато в магнитном поле 0.9 кЭ получено $T_e \approx T_1 \propto V_m^{19 \pm 1}$. Эти данные для зависимости времени T_e от плотности кристалла проверяются в настоящей работе.

В разд. 6 описываются измерения зависимости T_1 от магнитного поля в области доминирования обменных процессов — в точке минимума на кривой плавления ${}^3\text{He}$. Результаты этих измерений позволяют проверить вывод теоретической работы [19] о наличии корневой особенности на зависимости $T_1(H_0)$ в слабых магнитных полях, который отличается от зависимости типа (1), предсказываемой моделью БПП.

3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Ячейка, использовавшаяся для опытов с твердым ${}^3\text{He}$, показана на рис. 1. Корпус камеры высокого давления выполнен из эпоксидной смолы Стайкаст-1266, армированной бумагой. Внутренний объем ячейки составляет около 0.3 см³. В верхнюю часть была вклеена медная втулка, в которую впаля капилляр заполнения. В нижнюю часть вклеена игла медного холодопровода, который имел тепловой контакт в виде резьбового соединения с камерой растворения рефрижератора ${}^3\text{He}$ – ${}^4\text{He}$. Температура ячейки определялась по термометру сопротивления из угольного резистора Мацусита 70 Ом, 0.125 Вт, установленному на холодопроводе ячейки. Этот термометр использовался для стабилизации температуры камеры растворения. Градуировка термометра была выполнена по конденсационному термометру ${}^3\text{He}$ и магнитной восприимчивости церий-магниевого нитрата; проверка этой калибровки была проведена по величине сигнала от спинов твердого ${}^3\text{He}$. Отклонение измеренных в настоящей работе температур плавления кристаллов от значений, соответствующих кривой плавления ${}^3\text{He}$, не превышало по температуре 1%. Термометр в верхней части ячейки на капилляре заполнения служил для определения начала и окончания процесса роста кристалла. Термометры сопротивления были подключены к мостовым измерительным схемам (криомостам), выход которых можно было записывать в компьютер. Капилляр заполнения из медно-никелевого сплава с внутренним диаметром 0.14 мм имел тепловой контакт с холодопроводом ячейки через тепловой мост, представлявший собой

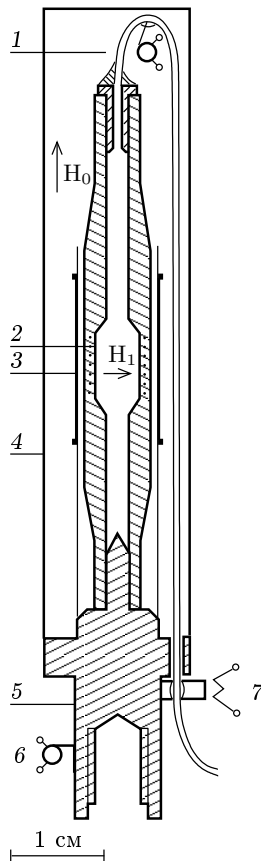


Рис. 1. Схема экспериментальной ячейки: 1 — термометр на капилляре заполнения, 2 — приемная катушка трансформатора потока, 3 — катушки РЧ-поля, 4 — экран ячейки, 5 — медный холодопровод, 6 — термометр, 7 — нагреватель на тепловом мосте

латунную пластинку с остаточным сопротивлением около 0.3 мОм, на котором во избежание блокировки капилляра кристаллической пробкой установлен электрический нагреватель. Линия заполнения имела далее аналогичный тепловой мост в месте ее контакта с камерой испарения рефрижератора растворения, температура которой была около 0.5 К, и в части опытов имелся также еще один тепловой мост в месте контакта с камерой растворения.

Газ ^3He , использовавшийся для выращивания кристаллов, содержал не более 0.02 % ^4He . Контроль давления осуществлялся с помощью электронного датчика давления и визуально по стрелочному манометру. Уровень шумов электронного датчика не превышал 1 мбар; абсолютная точность определения давления, которую можно было проверять по давлению в точке минимума на кривой плавления, составляла около 40 мбар.

Детектирование продольной намагниченности ядер ^3He проводилось с помощью магнитометра на основе ВЧ-СКВИДа [20, 21]. Стационарное магнитное поле H_0 захватывалось ниобиевой трубкой экрана ячейки при ее охлаждении. Радиочастотное (РЧ) поле H_1 с круговой поляризацией, использовавшееся для возбуждения ЯМР, создавалось двумя скрещенными седлообразными сверхпроводящими катушками. Калибровка величины H_1 проводилась по сдвигу частоты резонансной линии в условиях наложения сильного непрерывного РЧ-поля, отстроенного от резонанса, этот сдвиг аналогичен сдвигу Блоха–Зигерта [22, гл. II, § 1]. Постоянно в течение всего ЯМР-эксперимента было включено непрерывное РЧ-поле $H_1 = 0.02$ Э на частоте ЯМР-протонов, это поле «насыщало» сигнал протонов стенок камеры. Выход СКВИДа записывался в компьютер, который также осуществлял коммутацию РЧ-поля и управлял разверткой частоты РЧ-поля вблизи частоты ЯМР ^3He . При записях сигнала ЯМР от твердого ^3He обычно проводились многократные последовательные прохождения линии резонанса с накоплением и усреднением сигнала с помощью компьютера.

Приемная катушка СКВИД-магнитометра была вклеена непосредственно в стенку камеры, поэтому помимо магнитного сигнала из-за изменений площади контура приемной катушки магнитометр был чувствителен также к изменениям давления внутри ячейки. Это обстоятельство позволяло контролировать стабильность давления внутри ячейки, заполненной кристаллом; по резкому росту давления при нагреве кристалла можно было фиксировать температуру плавления.

4. ВЫРАЩИВАНИЕ КРИСТАЛЛОВ

Давление величиной до 34 бар, необходимое для выращивания кристалла, создавалось с помощью камеры высокого давления (газификатора) объемом 4 см³. Объем газовой системы высокого давления, которая находилась при комнатной температуре, — стрелочный манометр, электронный датчик давления, вентиль — составлял около 14 см³. Вначале в ячейку и газификатор конденсировалось около 0.08 моля ^3He . Далее, для создания нужного давления газификатор подогревался до температуры 30–40 К. Регулирование нагрева газификатора можно было осуществлять автоматически с помощью компьютера; в качестве параметров управления использовался выход электронного датчика давления, а также

показания термометра сопротивления на капилляре заполнения ячейки. Имелась возможность стабилизировать давление или изменять его с заданной скоростью.

Перед началом выращивания кристалла во время роста давления до выбранной величины температура холодопровода ячейки (далее будем называть эту температурную точку «А») стабилизировалась несколько выше температуры плавления T_m , соответствующей выбранному давлению; были включены нагреватели на тепловых мостах в местах тепловых контактов капилляра заполнения ячейки. Затем осуществлялась стабилизация давления, а регулятор температуры А переключался на значение около $T_m - 60$ мК. Момент начала роста кристалла определялся по началу увеличения температуры термометра на капилляре заполнения ячейки (далее будем называть этот термометр «В»), вызванного появлением притока в ячейку более нагретой жидкости. Обычно при $T_m < 0.6$ К кристалл начал расти через 4–10 мин после охлаждения холодопровода ячейки и стабилизации указанного значения температуры T_A . Кажущийся «заход» жидкого ^3He в область существования кристалла на фазовой диаграмме с величиной $P - p_m(T_A) \leq 0.5$ бар (P — давление в ячейке, $p_m(T_A)$ — давление плавления кристалла при температуре T_A) не удается строго интерпретировать как метастабильное состояние жидкости из-за сложности процесса теплопередачи в жидком ^3He вблизи иглы холодопровода с возможным возникновением конвекции. В отдельных опытах, по-видимому, кристалл начинал расти в капилляре заполнения где-то вблизи термометра В с кратковременными блокировками капилляра, это проявлялось в виде «скачков» T_B и выхода СКВИДа из-за колебаний давления в ячейке. При низких температурах плавления, $T_m \leq 0.55$ К, кристалл обычно начинал расти не на игле холодопровода снизу ячейки; момент, когда растущий кристалл достигал иглы, регистрировался по кратковременному подъему температуры холодопровода T_A . После этого момента кристалл постепенно заполнял ячейку снизу вверх; скорость роста при этом определялась, очевидно, отводом теплоты кристаллизации от фронта роста через столб уже выросшего кристалла к игле холодопровода. Рост кристалла можно было наблюдать по величине сигнала ЯМР от твердой фазы, рис. 2. Время роста от момента его начала на игле составляло от 10 мин при $T_m = 0.5$ К до 50 мин при $T_m = 0.74$ К. Окончание роста кристалла в ячейке проявлялось в виде резкого уменьшения T_B . Увеличение сигнала ЯМР в этот момент вызвано остыва-

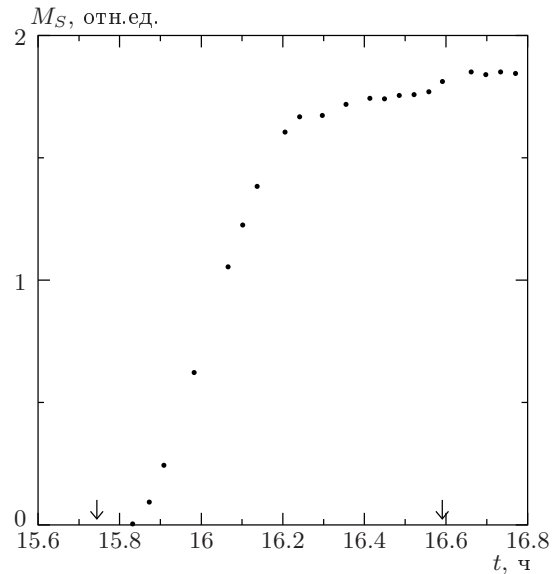


Рис. 2. Величина сигнала от твердой фазы во время роста кристалла. Давление $P = 34$ бар ($T_m \approx 0.74$ К), $T_A = 0.66$ К, стрелки указывают начало и конец роста кристалла в ячейке

нием кристалла в ячейке до температуры холодопровода T_A .

В ранней серии опытов капилляр заполнения ячейки имел три тепловых контакта (мост и нагреватель на нем): с холодопроводом ячейки, с камерой растворения и с камерой испарения машины растворения. Электрические нагреватели (включенные в общую токовую цепь) одновременно выключались примерно через 10 мин после окончания роста кристалла в ячейке. Было обнаружено, что давление в ячейке вскоре после этого начинало уменьшаться. Очевидно, это происходило из-за зарастания кристаллом капилляра заполнения, который блокируется пробкой в месте контакта с камерой испарения; причем из-за высокой пластичности кристалла уменьшение давления в верхней части ячейки передавалось в измерительный объем в ее центре. В этих опытах для проведения измерений ЯМР при различных температурах в условиях постоянной плотности кристалл вначале выдерживался в течение 1 ч при температуре около $T_m - 70$ мК до достижения стабильности давления, затем кристалл «отжигался» при температуре $T_m - 10$ мК в течение еще 1 ч. Общее уменьшение давления в ячейке после роста кристалла составляло 50–70 мбар. Далее во время измерений ЯМР температура ступенями понижалась до наинизшей (около 0.25 К), по стабильности выхода СКВИДа можно было судить о неизменности плот-

ности кристалла в измерительном объеме ячейки. В этих опытах при последующем отогреве кристалла давление обычно вновь начинало уменьшаться.

В более поздней серии опытов для создания контролируемого роста кристалла в линии заполнения капилляр заполнения имел только два тепловых контакта: с ячейкой и с камерой испарения; нагреватель на тепловом мосте в месте контакта с камерой испарения оставался включенным постоянно. Через примерно 0.5 ч после окончания роста кристалла в ячейке при $T_A \approx T_m - 55$ мК начиналось плавное снижение тока через электрический нагреватель в месте контакта линии заполнения с холодопроводом ячейки, которое проводилось с помощью разряда батареи конденсаторов с постоянной времени 1 ч, от начального значения мощности равного 5 мВт. Через 1 ч нагреватель выключался; ячейка нагревалась до температуры $T_m - 10$ мК, и кристалл выдерживался при этой температуре («отжигался») в течение 0.5 ч. После такой процедуры приготовления кристалла при измерениях ЯМР давление в ячейке было стабильно при охлаждении до низшей температуры и при последующем нагреве до T_m . Температура плавления T_m определялась во всех опытах по началу резкого увеличения давления в ячейке при нагреве кристалла.

В разд. 6 описываются эксперименты с твердым ^3He в точке минимума кривой плавления на фазовой диаграмме. В этих опытах перед выращиванием кристалла температура холодопровода T_A стабилизировалась при температуре точки минимума (0.315 К), а давление поднималось со скоростью 0.14 мбар/с. Кристалл начинал расти при $P - p_m(T_A) = 0.10 - 0.15$ бар. Кристалл заращивал экспериментальную камеру за время (с момента начала роста на игле холодопровода до уменьшения T_B) около 3 мин; давление во время роста было заметно выше давления в точке минимума. Затем давление уменьшалось, и кристалл расплавлялся почти полностью, контроль отсутствия твердой фазы в центральной измерительной части ячейки проводился по сигналу ЯМР. Небольшой кристалл еще оставался в самом низу ячейки на игле холодопровода. Далее по программе от компьютера температура газификатора начинала повышаться, причем в качестве параметра управления учитывалась температура T_B . Кристалл начинал расти и заполнял всю ячейку примерно за 20 мин, давление во время роста не превышало давления в точке минимума более чем на 1–2 мбар.

5. ИЗМЕРЕНИЯ T_1 . ВКЛАД ВАКАНСИЙ

Возбуждение спиновой системы, после которого наблюдалась спин-решеточная релаксация, выполнялось с помощью адиабатического быстрого прохождения линии ЯМР. Величина РЧ-поля H_1 и скорость развертки частоты были выбраны так, чтобы выполнить условие адиабатичности прохождения $(\gamma H_1)^2 \gg d\omega/dt$, которое обеспечивало инверсию (переворот) намагниченности при прохождении [22, гл. III]. Длительность прохождения, порядка $\gamma H_1 / (d\omega/dt)$, была много короче T_1 . При прохождении линии, таким образом, осуществлялась быстрая адиабатическая инверсия спинов, за которой следовала относительно медленная релаксация спиновой намагниченности к равновесной величине. Измерительный цикл, выполнявшийся с помощью компьютера, заключался во включении циркулярно-поляризованного РЧ-поля H_1 величиной от 11 до

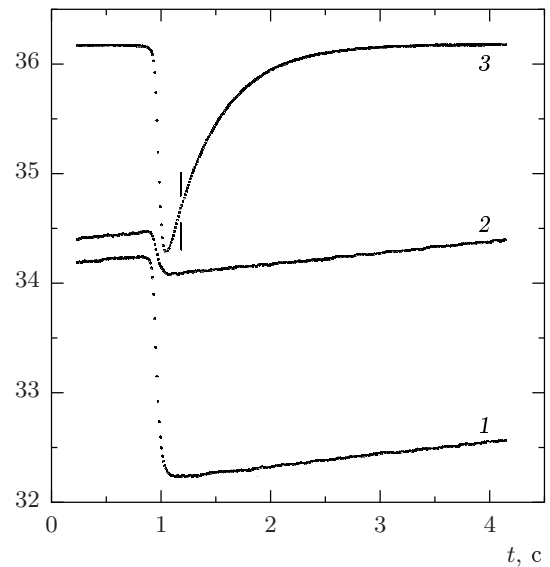


Рис. 3. Записи выхода СКВИДа при прохождении резонанса. $H_0 = 44$ Э, $H_1 = 16$ мЭ, скорость развертки частоты РЧ-поля 3.27 кГц/с. Записи 1 и 2 соответствуют жидкому ^3He при $T = 0.53$ К, $P = 30.3$ бар, $dP/dt = 1$ мбар/с; «подъем» на записях вызван ростом давления в ячейке. Запись 2 выполнена через 1.5 мин после записи 1, уменьшение сигнала вызвано неполной релаксацией спинов после прохождения 1. Запись 3 соответствует твердому ^3He при $T = 0.50$ К, $P = 30.5$ бар; эта запись является результатом усреднения по 20 прохождениям линии резонанса. Для определения T_1 использовалась часть записи справа от вертикальных штрихов

16 мЭ на частоте примерно на 2 кГц ниже резонансного значения, развертке частоты РЧ-поля через линию резонанса со скоростью около 3 кГц/с в течение времени примерно 4 с и, окончательно, в выключении РЧ-поля. Записи выхода СКВИДа, показывающие эволюцию продольной намагниченности спинов ^3He во время измерительного цикла, показаны на рис. 3. В случае растущего кристалла при сосуществовании в ячейке жидкой и твердой фаз быстрая спиновая релаксация твердого ^3He позволяет выделять сигнал от ядер твердого ^3He . Величины T_1 в твердом ^3He в условиях проведенных опытов составляли от 0.3 до 0.5 с, при этом к концу измерительного цикла спиновая система возвращалась к состоянию равновесия. При измерениях T_1 в твердом ^3He этот цикл проводился многократно с накоплением сигнала с помощью компьютера, время повторения циклов было обычно 6 с. Измерения T_1 , описываемые в этом разделе, были проведены в стационарном магнитном поле H_0 равном 44 Э (резонансная частота 142 кГц). В этом поле магнитный момент ядер был достаточно велик, так что при времени накопления сигнала около 10 мин можно было проводить измерения T_1 с точностью не хуже 0.1 %. Перед измерениями T_1 кристалл выдерживался при выбранной температуре в течение времени не менее 4 мин.

Определение времени T_1 проводилось с помощью аппроксимации записи выхода СКВИДа $S(t)$ после примерно 0.2 с от момента инверсии t_i по соотношению

$$S(t) = \text{const} - M_s \exp \frac{t_i - t}{T_1}. \quad (5)$$

Величина M_s соответствует удвоенному равновесному при данной температуре магнитному моменту ядер твердого ^3He (в относительных единицах выхода СКВИДа). Вычитание подгоночной кривой (5) из измеренной зависимости выхода СКВИДа от времени позволило проверить экспоненциальность спин-решеточной релаксации.

Времена T_1 , которые были получены для кристалла с $T_m = 0.51$ К при различных температурах, показаны на рис. 4. При температурах ниже примерно 0.4 К величины T_1 не зависят от температуры, в этой области температур релаксация определяется обменными процессами атомного движения в кристалле. Мы описывали измеренные температурные зависимости T_1 с помощью соотношения (4). Время T_e , которое характеризует обменные процессы, зависит только от плотности кристалла. Полученная нами зависимость времени T_e от плотности $T_e \propto V_m^{20}$ согласуется с известной [10, 17] зависимо-

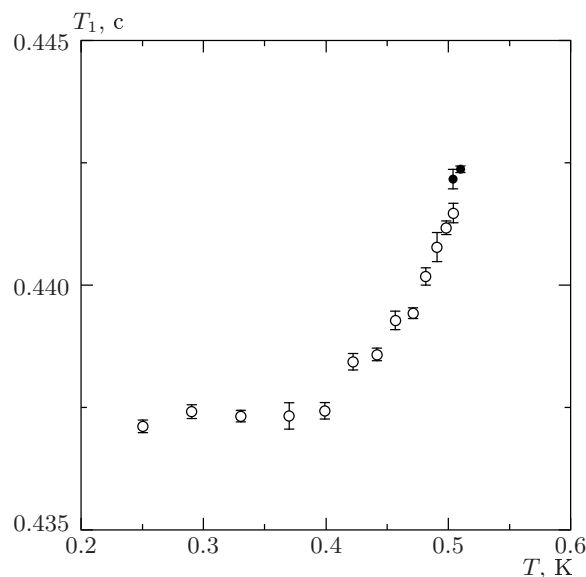


Рис. 4. Температурная зависимость времени T_1 релаксации спинов для кристалла с $T_m = 0.51$ К (давление роста кристалла 30.5 бар). \circ — охлаждение, \bullet — нагрев кристалла в конце измерений

стью частоты обменного взаимодействия от плотности $\omega_e \propto V_m^{18}$ и с результатами измерений T_1 в поле $H_0 = 0.9$ кЭ [18].

Увеличение времени T_1 при повышении температуры выше 0.4 К указывает на ускорение процессов атомного движения в кристалле и интерпретируется как включение вакансионного механизма движения. Подгоночные параметры уравнения (4), описывающие вклад вакансий, — это предэкспоненциальный множитель T_0 и энергия активации Φ . Время T_0 с точностью проведенных измерений не зависит от плотности кристалла, рис. 5а; средняя величина для восьми образцов с температурами плавления от 0.51 до 0.735 К составляет $T_0 = 59 \pm 12$ с. Плотности кристаллов с температурами плавления 0.51 и 0.735 К отличаются примерно на 2 %, и далее мы будем пренебрегать возможной зависимостью времени T_0 от плотности кристалла. Для определения энергии активации измеренные зависимости $T_1(T)$ были вновь обработаны с помощью соотношения (4), причем параметр T_0 был фиксирован равным приведенной выше средней величине. Такая процедура позволила уменьшить статистический разброс значений энергии активации и выявить ее зависимость от плотности кристалла. Полученные величины Φ показаны на рис. 5б. Энергия активации вакансий возрастает с увеличением плотности кристалла.

На рис. 6 в координатах ΔT_1 в логарифмиче-

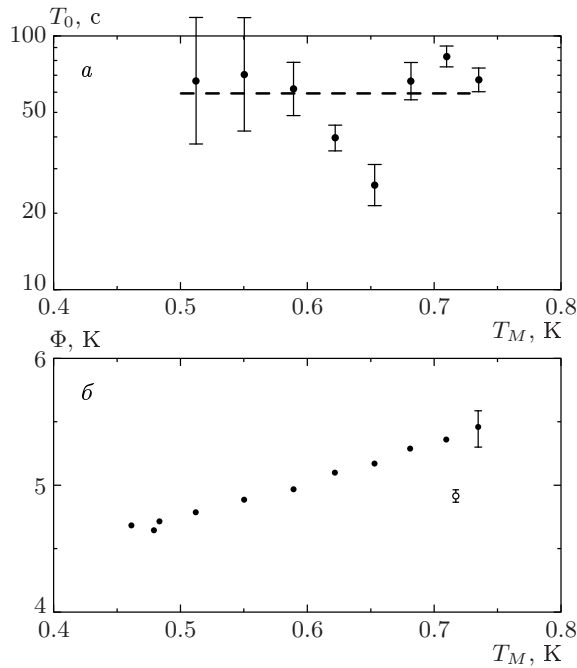


Рис. 5. *a)* Предэкспоненциальный множитель, полученный при обработке зависимостей $T_1(T)$ по соотношению (4), как функция температуры плавления кристаллов. *б)* Энергии активации вакансий. При определении этих величин было взято среднее значение предэкспоненциального множителя, показанное на рис. 5*a* штрихом. Для точки с $T_m = 0.735$ К показана ошибка, связанная с неточностью определения T_0 : \circ — данные работы [3], полученные по зависимости давления от температуры

ском масштабе как функции обратной температуры приведены величины $T_1(T) - T_e$ для кристалла с наибольшей плотностью с $T_m = 0.735$ К. Величина T_e для этого кристалла (равная 0.30 с) была определена как среднее значение времен T_1 при $T < 0.4$ К. Наклон этой зависимости дает величину энергии активации вакансий Φ для кристалла данной плотности. Кружками на рис. 6 приведены величины $T_1(T_m) - T_e$ как функции обратной температуры плавления для каждого отдельного кристалла, для которого были проведены измерения температурной зависимости T_1 . Величина $T_1(T_m)$ определялась с помощью экстраполяции зависимости $T_1(T)$ для каждого кристалла к его температуре плавления. Эта кривая дает увеличение времени T_1 от области обменного плато до точки плавления и показывает, как уменьшается величина вакансионного вклада в T_1 в этой точке по мере уменьшения температуры плавления. Меньший наклон этой зависимо-

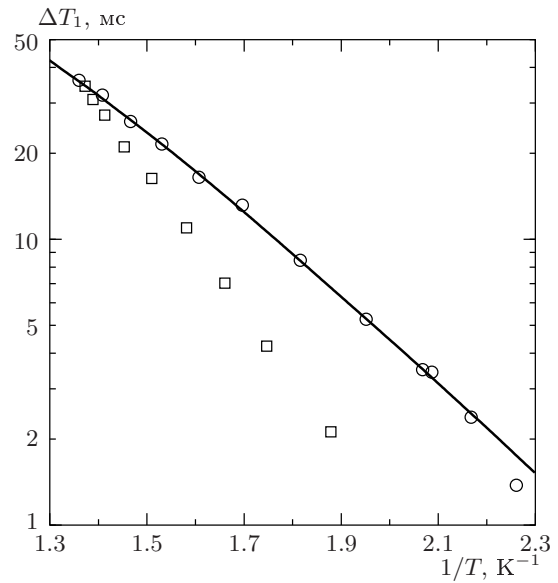


Рис. 6. \square — величины $T_1 - T_e$ для наиболее плотного исследованного кристалла с $T_m = 0.735$ К; \circ — увеличение T_1 от области обменного плато до точки плавления как функция обратной температуры плавления кристаллов. При рассмотрении сплошной кривой используются среднее значение T_0 и зависимость $\Phi(T_m)$ по рис. 5*б*

сти обусловлен убыванием энергии активации при уменьшении плотности кристалла. Сплошная кривая на рис. 6, которая дает величину $T_0 \exp(-\Phi/T_m)$, проведена с использованием сглаженной зависимости энергии активации от температуры плавления, показанной на рис. 5*б*, и среднего значения предэкспоненциального множителя T_0 . По величине производной $d\Phi/dT_m$ может быть рассчитана производная энергии активации вакансий по плотности кристалла. По результатам наших измерений величина $d\Phi/dV_m$ составляет $-1.4 \text{ К}/(\text{см}^3/\text{моль})$.

При сравнении с данными для энергии активации вакансий, полученными различными авторами, следует учитывать, что в соотношениях подобных (4) в рамках зонных моделей вакансионных в работах часто записывают предэкспоненциальный степенной температурный множитель. Величины энергии активации, полученные в настоящей работе, превышают данные, приведенные в работах [2–4] для $V_m > 24 \text{ см}^3/\text{моль}$, примерно на 0.4 К. Найденные нами величины Φ оказываются примерно на 0.5 К меньше значений, экстраполированных на большие молярные объемы из экспериментов с кристаллами с $T_m > 1.2$ К [6, рис. 3.13; 13, рис. 2].

Полученная величина времени T_0 — предэкспо-

ненциального множителя в уравнении (4) — позволяет оценить характерную частоту вакансионных движений и сделать оценку ширины энергетической зоны вакансий. Положим коэффициент α в уравнении (3) равным десяти [6, 13], тогда расчет ширины зоны вакансионных по соотношению [2, 13]

$$\Delta = 4(z - 1)^{1/2} \hbar \omega_v / k_B \quad (6)$$

(где z — число ближайших соседей, k_B — постоянная Больцмана) дает величину $\Delta = 0.6$ К. Авторы [13], анализируя полученные ими в высокотемпературном вакансионном режиме данные для T_1 , для частоты движения вакансий находят значение $\omega_v \simeq 0.5 \cdot 10^{10} \text{ с}^{-1}$, этому значению по уравнению (6) соответствует ширина зоны вакансионных $\Delta \approx 0.4$ К. Авторы работы [4] из экспериментов по движению пористой мембраны для ширины зоны вакансионных в твердом ${}^3\text{He}$ при наименьших плотностях находят значение $\Delta = 3.5\text{--}4$ К. Оценки величины Δ показывают, что в условиях наших экспериментов $\Delta \gtrsim T$: по-видимому, проведенное нами в рамках модели узкой зоны рассмотрение полученных зависимостей $T_1(T)$ не вполне корректно, и его следует рассматривать лишь как феноменологический подход. Вместе с тем, неопределенность с выработкой общей зонной модели вакансий в твердом ${}^3\text{He}$ не позволяет провести строгий анализ экспериментальных данных.

Отметим, что время T_0 (которое можно рассматривать как время спин-решеточной релаксации гипотетического кристалла, у которого относительная концентрация вакансий становится порядка единицы) оказывается близким к времени объемной релаксации спинов жидкого ${}^3\text{He}$ вблизи кривой плавления, эта величина составляет около 100 с [23]. Аналогичное обстоятельство для предэкспоненциального множителя в выражении для коэффициента спиновой диффузии твердого ${}^3\text{He}$ в вакансионном режиме отмечено Райхом [11].

6. ЗАВИСИМОСТЬ T_1 ОТ МАГНИТНОГО ПОЛЯ

Для описания спиновой релаксации в жидкостях и твердых телах, в которых происходит быстрое молекулярное движение, обычно используется модель БПП [15]. Для слабых магнитных полей эта модель предсказывает квадратичное увеличение T_1 с ростом магнитного поля от значения T_1 в нулевом поле, см. соотношение (1). В условиях наших экспериментов при $\omega_0 \tau_c \approx \omega_0 / \omega_e \lesssim 10^{-2}$ это увеличение T_1 по уравнению (1) не превышает величину поряд-

ка $10^{-4} T_1$ и оказывается меньше точности измерений. Модель БПП, рассматривающая релаксацию спинов через флуктуации дипольных полей, фактически учитывает взаимные движения только ближайших соседей, описывая эти движения одним временем корреляции. Сравнительно недавно, Кован и Фардис [19] (рассматривая область обменных процессов атомного движения) провели анализ поведения дипольных корреляционных функций на больших временах. Асимптотическое поведение, пропорциональное $t^{-3/2}$, обусловлено дипольными взаимодействиями между спинами, находящимися на расстояниях $\sim (Dt)^{1/2}$, где D — коэффициент спиновой диффузии. При этом функции спектральных плотностей содержат слагаемые, пропорциональные $\omega^{1/2}$, а время T_1 в слабых магнитных полях имеет корневую добавку к значению в нулевом магнитном поле [19]:

$$T_1(\omega_0) = T_1(0) + 0.70 \frac{n \hbar^2 \gamma^4}{D^{3/2}} (T_1(0))^2 \omega_0^{1/2}. \quad (7)$$

Имеющиеся экспериментальные данные, приведенные в работах [19, 24], подтверждают зависимость типа (7), однако эти измерения были проведены при довольно сильных магнитных полях, свыше примерно 150 Э, при этом величина добавочного слагаемого в (7) составляет более 10% от $T_1(0)$. На наш взгляд, для проверки правильности модели, предложенной авторами [19], представляло интерес провести измерения зависимости $T_1(H_0)$ для возможно более слабых магнитных полей.

В условиях наших экспериментов изменение магнитного поля H_0 требовало отогрева экспериментальной камеры и разрушения кристалла, поэтому измерения зависимости $T_1(H_0)$ проводились с разными кристаллами, выращенными в одной и той же точке на фазовой диаграмме: в точке минимума на кривой плавления. При определении времени спин-решеточной релаксации в этих опытах мы попытались получить возможно точнее абсолютные величины T_1 . С помощью численного моделирования прохождения резонанса по уравнениям Блоха с $T_1 = T_2$ было определено смещение определяемой экспериментально величины T_1 , связанное с «крылом» линии резонанса при данной величине РЧ-поля H_1 ; было учтено также конечное быстроедействие СКВИД-магнитометра. Полученная поправка учитывалась при определении T_1 , ее величина для измерений в полях $H_0 \geq 5$ Э не превышала 0.9 мс. Найденные величины T_1 для полей H_0 от 2 до 71 Э как функции корня из магнитного поля приведены на рис. 7. Для полей $H_0 > 5$ Э, при

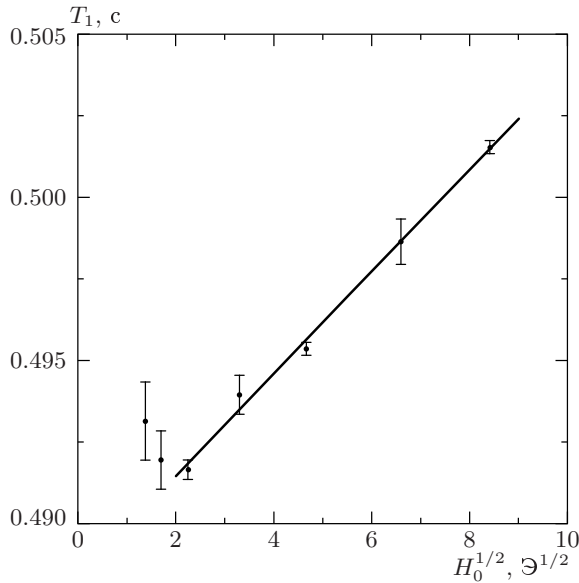


Рис. 7. Зависимость времени релаксации спинов от корня из магнитного поля для твердого ${}^3\text{He}$ в точке минимума на кривой плавления. Наклон этой зависимости при $H_0 > 5 \text{ Oe}$ позволяет сделать оценку D

которых измерения T_1 можно было провести с достаточной точностью, наблюдается линейная зависимость T_1 от $H_0^{1/2}$ по уравнению (7). Расчет коэффициента спиновой диффузии по величине наклона по уравнению (7) дает величину $D \approx 1.3 \cdot 10^{-7} \text{ cm}^2/\text{c}$. Эта величина близка к значению D , которое может быть получено экстраполяцией величин D , найденных в экспериментах для кристаллов ${}^3\text{He}$ малой плотности [6, 19], к плотности точки минимума. Это значение составляет около $(1.5-2) \cdot 10^{-7} \text{ cm}^2/\text{c}$.

Рассмотрим вопрос о возможном влиянии зависимости T_1 от магнитного поля на величину вакансионного вклада в T_1 . Так как $D \approx 1/(n^{2/3}\tau_c)$, второе слагаемое в уравнении (7), описывающее увеличение T_1 в поле H_0 , может быть записано как

$$\Delta T_1(\omega_0) \approx T_1(0) (\omega_0 \tau_c)^{1/2} \approx (1/M_2) (\omega_0/\tau_c)^{1/2}.$$

Эта величина возрастает при появлении в кристалле вакансий. Отношение изменения $\Delta T_1(\omega_0)$ к изменению $T_1(0)$, даваемого соотношением (2), при изменении τ_c составляет величину порядка 2%. Это позволяет не учитывать зависимость T_1 от H_0 при рассмотрении вакансионного вклада в T_1 в условиях проведенных экспериментов.

7. ВЫВОДЫ

В данной работе проведены измерения времени спин-решеточной релаксации T_1 ядер в кристаллах ${}^3\text{He}$ с температурами плавления ниже 0.735 К в слабых магнитных полях. При температурах выше $\approx 0.4 \text{ K}$ величины T_1 возрастают, это связывается с включением вакансионного механизма движения атомов в кристалле. Результаты измерений были обработаны с помощью активационного закона. Получены значения предэкспоненциального множителя и энергии активации вакансий, сделана оценка для производной энергии активации по плотности кристалла. Найденная в рамках модели узкой зоны вакансионной величины энергии активации, которая составляет $5.0 \pm 0.15 \text{ K}$ для кристалла с температурой плавления 0.6 К, приблизительно на 0.4 К превышает наиболее поздние имеющиеся в литературе данные [2, 4] для этой величины. Полученная зависимость T_1 от магнитного поля H_0 в диапазоне примерно от 5 Oe до наибольшей в данной работе величины 71 Oe согласуется с выводом авторов работы [19] о корневой особенности на зависимости $T_1(H_0)$ в слабых магнитных полях. Имеется хорошее количественное согласие с предсказанием этой теории.

Автор благодарен В. И. Марченко и А. Я. Паршину за обсуждения работы.

ЛИТЕРАТУРА

1. S. M. Heald, D. R. Baer, and R. O. Simmons, Phys. Rev. B **30**, 2531 (1984).
2. M. E. R. Bernier and J. H. Netherington, Phys. Rev. B **39**, 11285 (1989).
3. I. Iwasa and H. Suzuki, J. Low Temp. Phys. **62**, 1 (1986).
4. N. V. Zuev, V. V. Boiko, N. E. Dyumin, and V. N. Grigor'ev, J. Low Temp. Phys. **111**, 597 (1998).
5. Я. Е. Волокитин, А. И. Голов, Л. П. Межов-Деглин, Письма в ЖЭТФ **56**, 595 (1992).
6. А. Абрагам, М. Гольдман, *Ядерный магнетизм: порядок и беспорядок*, т. 1, гл. 3, Мир, Москва (1984).
7. А. Ф. Андреев, А. Д. Савищев, ЖЭТФ **119**, 403 (2001).
8. G. Montambaux, M. Heritier, and P. Lederer, J. Low Temp. Phys. **47**, 39 (1982).

9. М. Гольдман, *Спиновая температура и ЯМР в твердых телах*, гл. 3, Мир, Москва (1972)
10. M. Chapellier, M. Bassou, M. Devoret et al., J. Low Temp. Phys. **59**, 45 (1985).
11. H. A. Reich, Phys. Rev. **129**, 630 (1963).
12. S. R. Hartman, Phys. Rev. A **133**, 17 (1964).
13. N. Sullivan, G. Deville, and A. Landesman, Phys. Rev. B **11**, 1858 (1975).
14. M. E. R. Bernier and G. Guerrier, Physica B **121**, 202 (1983).
15. N. Bloembergen, E. M. Purcell, and R. V. Pound, Phys. Rev. **73**, 679 (1948).
16. А. Ф. Андреев, Письма в ЖЭТФ **24**, 608 (1976).
17. M. E. R. Bernier, J. Low Temp. Phys. **56**, 205 (1984).
18. M. Devoret, A. S. Greenberg, D. Esteve et al., J. Low Temp. Phys. **48**, 495 (1982).
19. B. Cowan and M. Fardis, Phys. Rev. B **44**, 4304 (1991).
20. О. В. Лоунасмаа, *Принципы и методы получения температур ниже 1 К*, гл. 7, Мир, Москва (1977).
21. И. С. Солодовников, Н. В. Заварицкий, ЖЭТФ **110**, 2047 (1996).
22. А. Абрагам, *Ядерный магнетизм*, ИИЛ, Москва (1963).
23. B. T. Beal and J. Hatton, Phys. Rev. A **139**, 1751 (1965).
24. B. Cowan and M. Fardis, ФНТ **23**, 598 (1997).