

О ВОЗМОЖНОСТИ ДИНАМИЧЕСКОЙ ПОЛЯРИЗАЦИИ ЯДЕР С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ ДИЭЛЕКТРИЧЕСКИХ ВАН-ФЛЕКОВСКИХ ПАРАМАГНЕТИКОВ

М.С.Тагиров, Д.А.Таюрский¹⁾

*Казанский государственный университет
420008 Казань, Россия*

Поступила в редакцию 7 марта 1995 г.

Предлагается использовать ван-флековские парамагнетики, имеющие немагнитное основное состояние, для получения поляризации ядерных спинов. В качестве примера рассмотрен этилсульфат тулия, для которого выполнены расчеты штарковской структуры в сильных магнитных полях, резонансных магнитных полей для мощных импульсных линий газовых лазеров в субмиллиметровом диапазоне. Обсуждается возможность передачи поляризации ядер тулия ядрам жидкого гелия-3.

1. Системы с высокой поляризацией ядерных спинов являются объектами интенсивных исследований как в физике элементарных частиц, так и в физике твердого тела [1]. По сравнению с методом "грубой силы" (сверхсильные магнитные поля и сверхнизкие температуры) методы динамической поляризации ядер (ДПЯ) [1,2] являются более доступными. Один из методов ДПЯ – так называемый "солид-эффект" – основан на переносе поляризации от примесных парамагнитных центров к ядерной спиновой системе. В данной работе предлагается модификация этого метода с использованием ван-флековских парамагнетиков, в которых ван-флековские ионы расположены в узлах регулярной кристаллической решетки и действуют как парамагнитные центры при передаче поляризации ядрам.

2. Известно, что в кристаллах, содержащих редкоземельные ионы с четным числом электронов в $4f$ -оболочке (Pr^{3+} , Eu^{3+} , Tb^{3+} , Ho^{3+} , Tm^{3+}), основной мультиплет расщепляется кристаллическим полем так, что основное состояние является синглетом или немагнитным дублетом, отделенным от вышележащих уровней интервалом $\Delta \approx 10 \div 100 \text{ см}^{-1}$ [3]. Ядерные спины ван-флековских ионов и диамагнитных атомов кристаллической решетки эффективно связаны с электронной оболочкой сверхтонким взаимодействием. Внешнее магнитное поле H_0 индуцирует магнитный момент электронной оболочки в основном немагнитном состоянии. Однако передача поляризации электронной оболочки ядерным спином при $kT \ll \Delta$ невозможна из-за статического характера сверхтонкого поля. Поэтому применение солид-эффекта в данной ситуации означает, что необходимо перевести электронную оболочку в возбужденное состояние (в этом смысле "деполяризовать" ее), при релаксации из которого часть электронной поляризации будет переноситься в ядерную спиновую систему за счет сверхтонкого взаимодействия. На этом пути необходимо решить следующие проблемы. Во-первых, поскольку энергетический интервал между основным и возбужденным состояниями основного терма достаточно велик, то для возбуждения электронной оболочки требуется использование либо лазерного излучения в далекой инфракрасной области [4], либо тепловых

¹⁾e-mail: mtagirov@phys.ksu.ras.ru, dima@phys.ksu.ras.ru

баллистических импульсов [5]. Во-вторых, существует утечка ядерной поляризации за счет процессов ядерной спин-решеточной релаксации. Обсудим последний фактор более подробно.

Кристаллы ван-флековских парамагнетиков содержат парамагнитные примеси (Er^{3+} , Yb^{3+} и т. д.). Флуктуации магнитных полей этих примесных ионов обуславливают хорошо известный механизм ядерной спин-решеточной релаксации, скорость которой пропорциональна фактору $1 - p_0^2$, где p_0 - поляризация парамагнитной примеси. Поэтому для уменьшения потерь за счет этого механизма релаксации необходимо использование высоких магнитных полей.

Кроме того, эффективное магнитное поле на ядре редкоземельного иона складывается из H_0 и из сверхтонкого магнитного поля H_{hf} , которое параллельно внешнему полю и в α раз больше его по величине (параметр α называется парамагнитным сдвигом и имеет значения в интервале $1 \div 300$). Сверхтонкое магнитное поле при температурах $kT \ll \Delta$ имеет как постоянную составляющую, которая приводит к сдвигу частоты ЯМР, так и флуктуирующую составляющую за счет переходов $4f$ -электронной оболочки в возбужденные состояния. Спектр термических флуктуаций сверхтонкого поля имеет отличную от нуля компоненту на резонансной частоте ядерных спинов ω_n как ван-флековских ионов, так и диамагнитных атомов кристаллической решетки, в результате чего появляется эффективный канал ядерной спин-решеточной релаксации [6]. Для ядерных спинов $I = 1/2$ скорость этой релаксации в диэлектрических ван-флековских парамагнетиках в приближении коротких времен корреляции флуктуаций сверхтонких полей $\omega_n \tau_c \ll 1$ (τ_c порядка 10^{-10} с) дается выражением $T_1^{-1} = (A + B\omega_n^2) \exp(-\Delta/kT)$ [6], где параметры A и B определяются строением кристаллической решетки. Этот механизм доминирует при температурах $1 \div 2$ К при концентрациях парамагнитных примесей порядка 0,1%. В высоких магнитных полях эффективность релаксации за счет флуктуаций сверхтонких полей также уменьшается.

3. Использование высоких магнитных полей (> 50 кЭ) приводит также к изменению интервалов между уровнями шариковой структуры ван-флековских ионов (см. п.4). С точки зрения эксперимента, это обстоятельство является чрезвычайно важным, так как позволяет с помощью магнитного поля добиваться совпадения расстояния между основным и возбужденным уровнями с энергией определенной линии лазерного излучения.

Однако для контроля возможности процесса ДПЯ с использованием ван-флековских парамагнетиков необходимо иметь информацию об ЭПР в таких высоких магнитных полях. К настоящему времени ЭПР на переходах между немагнитным основным состоянием и ближайшим возбужденным состоянием не наблюдался.

4. Проиллюстрируем возможности применения метода ДПЯ с использованием ван-флековских парамагнетиков на примере хорошо изученного кристалла этилсульфата тюлия $\text{Tm}(\text{C}_2\text{H}_5\text{SO}_4)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ (TmES) [3]. Зависимость шариковых уровней энергии иона Tm^{3+} (основной терм $^3\text{H}_6$ ($J = 6$)) от величины магнитного поля H_0 , перпендикулярного кристаллографической оси c , показана на рис.1. При гелиевых температурах магнитные свойства ионов будут определяться нижними уровнями - немагнитным синглетом $|g\rangle$ и расщепленным сильным магнитным полем первым возбужденным дублетом $|d_{1,2}\rangle$ (рис.2). Возможные магнитные переходы и квадраты соответствующих им матричных

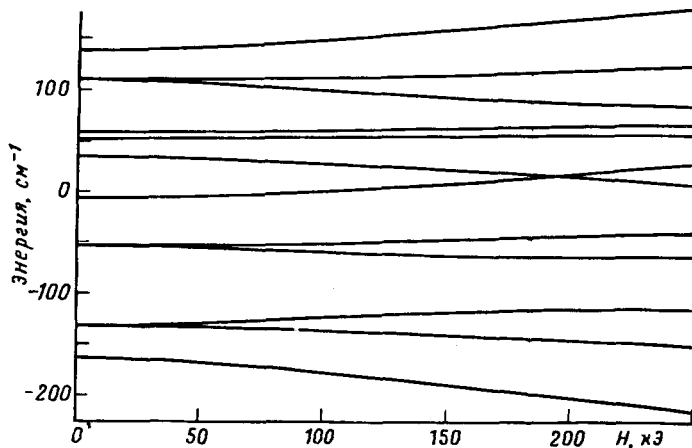


Рис.1. Зависимость штарковских уровней энергии иона Tm^{3+} (основной терм 3H_6 ($J = 6$)) в этилсульфате тулия от величины внешнего магнитного поля, направленного перпендикулярно кристаллографической оси c

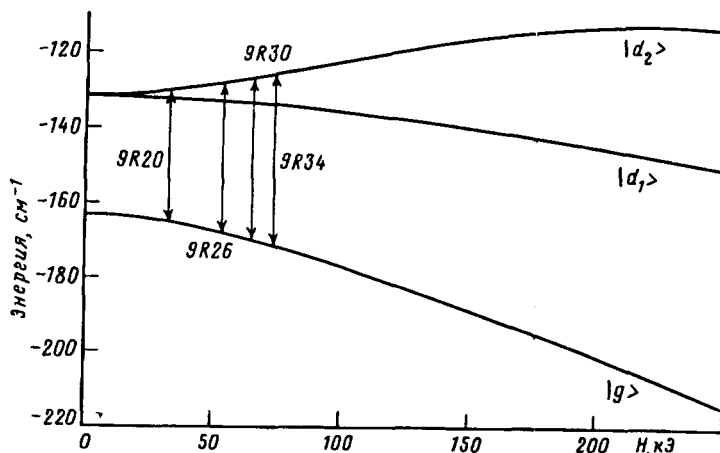


Рис.2. Нижние уровни энергии иона Tm^{3+} в этилсульфате тулия в сильных магнитных полях и возможные переходы ЭПР субмиллиметрового диапазона (пояснения см. в тексте)

элементов приведены ниже (матричные элементы для переходов $|g\rangle \rightarrow |d_1\rangle$ равны нулю в магнитных полях до 250 кЭ):

- для лазерной линии газа метилфлюорида CH_3F субмиллиметрового диапазона 9R30 с частотой $43,3\text{ см}^{-1}$ и мощностью импульса 10400 мкДж [4] резонансное поле для перехода $|g\rangle \rightarrow |d_2\rangle$ составляет 63,97 кЭ и квадрат матричного элемента $|\langle g|J_x|d_2\rangle|^2 = 10,8$;
- для линии 9R26 ($39,9\text{ см}^{-1}$, 9500 мкДж) поле равно 53,16 кЭ, $|\langle g|J_x|d_2\rangle|^2 = 12,5$;
- для линии 9R34 ($46,6\text{ см}^{-1}$, 5800 мкДж) поле равно 73,44 кЭ, $|\langle g|J_x|d_2\rangle|^2 = 9,6$;
- для линии 9R20 ($34,7\text{ см}^{-1}$, 5700 мкДж) поле равно 32,43 кЭ, $|\langle g|J_x|d_2\rangle|^2 = 16,0$;

Очевидно, что линия ЭПР, соответствующая переходу $|g\rangle \rightarrow |d_2\rangle$, будет иметь сверхтонкую структуру, состоящую из двух линий (100% изотоп ^{169}Tm имеет ядерный спин $I = 1/2$). Первым шагом на пути реализации предложенного метода должно быть наблюдение ЭПР на ионах Tm^{3+} в высоких магнитных полях (> 50 кЭ). В отличие от обычного солид-эффекта, где

насыщение линии ЭПР примесных парамагнитных центров осуществляется на крыле, в нашем случае насыщение должно проводиться на одной из компонент сверхтонкой структуры. Кроме того, в предлагаемом методе не требуется выполнение условий на соотношение между шириной линии ЭПР парамагнитных центров и резонансной частоты ядерных спинов [1,2].

5. При регистрации ядерной поляризации тулия в рассматриваемом случае нужно иметь в виду, что парамагнитный сдвиг с ростом приложенного магнитного поля H_0 уменьшается вследствие увеличения расщепления между основным и возбужденными уровнями.

Отметим также, что поляризация ядер тулия может быть передана другим ядрам диамагнитных атомов кристалла, так как эффективное гиромагнитное отношение ядер ^{169}Tm зависит от ориентации магнитного поля [3] и в определенных ориентациях происходит процесс кросс-релаксации. В этом смысле ядра жидкого гелия-3, находящегося в контакте с кристаллической поверхностью ван-флековского парамагнетика, принципиально не отличаются от упомянутых выше ядер диамагнитных атомов. За счет процессов переноса намагниченности, существование которых продемонстрировано Ричардсоном и сотрудниками [7], поляризация ядер тулия может быть передана ядрам гелия-3, адсорбированным на поверхности кристалла, а затем и ядрам жидкого гелия. Этот процесс будет наиболее эффективным и в условиях резонансной магнитной связи, обнаруженной в [8].

6. В заключение еще раз подчеркнем необходимость применения высоких магнитных полей. С одной стороны, в этих условиях практически замораживаются процессы ядерной спин-решеточной релаксации. С другой стороны, сильные магнитные поля необходимы для создания резонансных условий для ЭПР ван-флековских ионов.

Авторы выражают признательность Д.М.Ли, Ю.М.Бунькову и Ж.Вермулену за полезные обсуждения. Один из авторов (М.С.Т.) благодарен коллективу CNRS-CRTBT (Grenoble) за предоставленную возможность проведения части исследований данной работы.

-
1. A.Abragam and M.Goldman, Rep. Prog. Phys. 41, 395 (1978).
 2. В.А.Ацаркин, Динамическая поляризация ядер в твердых диэлектриках, М.: Наука, 1980.
 3. Л.К.Аминов, М.А.Теплов, УФН 147, 49 (1985).
 4. С.Т.Gross, J.Kiess, A.Mayer, and F.Keilman, IEEE J. Quantum Electron. QE-23, 377 (1987).
 5. С.А.Альтшулер, А.А.Антипин, Р.М.Рахматуллин и др., Письма в ЖЭТФ 33, 633 (1981).
 6. Л.К.Аминов, А.А.Кудряшов, М.С.Тагиров, М.А.Теплов, ЖЭТФ 86, 1791 (1984).
 7. F.W.van Keuls, R.W.Singerman, and R.C.Richardson, J. Low Temp. Phys. 96, 103 (1994).
 8. А.В.Егоров, Ф.Л.Аухадеев, М.С.Тагиров, М.А.Теплов, Письма в ЖЭТФ 39, 480 (1984).