

О МЮОННОЙ СПИНОВОЙ РЕЛАКСАЦИИ В ТВЕРДОМ ^3He

Е.П.Красноперов¹⁾, Е.Е.Мейлихов, К.Байнс⁺¹⁾, Д.Герлах⁺¹⁾, Г.Шолт⁺¹⁾,
У.Циммерманн⁺¹⁾, Д.Г.Ещенко^{*1)}

Российский научный центр "Курчатовский институт"
123182 Москва, Россия

⁺ Paul Scherrer Institute
CH-5232 Villigen, Switzerland

* Институт ядерных исследований
117312 Москва, Россия

Поступила в редакцию 28 апреля 1995 г.

В твердом ^3He мюонная спиновая релаксация имеет немонотонную зависимость от температуры. Показано, что ее происхождение связано только с магнитным дипольным взаимодействием. Наблюдаемое сужение линии не согласуется с прыжковым механизмом движения положительно заряженной частицы в рамках известного активационного закона. При низких температурах обнаружено аномальное возрастание скорости релаксации под действием электрического поля.

Температурные особенности скорости деполяризации мюонов (μ^+) в металлах [1] и атома мюония ($\text{Mu} = \mu^+e^-$) в щелочно-галогидных соединениях [2], описываются теорией диффузии делокализованной частицы, слабо взаимодействующей с решеткой. Общая теория строится в предположении индуцированного фононами туннельного перехода частицы между двумя эквивалентными положениями в решетке, имеющими близкие уровни энергии [3]. Однако, в квантовых кристаллах гелия положительно заряженная частица (обычно это ион матрицы) за счет поляризационного притяжения деформирует решетку, и уровни энергии в соседних ячейках оказываются сильно разнесенными. Это снижает вероятность туннелирования и приводит к самолокализации частицы, формирующей заряженный комплекс. Движение заряженных частиц в квантовых кристаллах происходит, по-видимому, за счет перетекания вакансий, которые рассматриваются как делокализованные квазичастицы [4]. Число вакансий в высокотемпературной области (вблизи точки плавления) убывает по активационному закону, что и определяет экспоненциальное падение подвижности примесных частиц с понижением температуры [5,6]. Параметры диффузии заряженных и нейтральных частиц в этой области весьма близки,

¹⁾ Е.П.Красноперов, Е.Е.Мейлихов, С.Байнс, Д.Герлах, Г.Шолт, У.Циммерманн, Д.Ещенко

что позволяет говорить об универсальности вакансионного механизма движения примесей в твердом гелии [4].

Масса мюона, как известно, в 30 раз меньше, чем у иона ${}^3\text{He}^+$, поэтому вопрос о его самолокализации в междуузлии остается открытым. Коэффициент диффузии мюона – D и скорость магнитно-дипольной релаксации мюонного спина – λ известным образом связаны между собой через время τ , которое частица проводит в междуузлии [1-3]. Этим определяется интерес к изучению методом μSR спиновой кинетики легкой, положительно заряженной частицы (мюона) в твердом гелии. Другим интереснейшим объектом в ${}^3\text{He}$ мог быть мюоний. Эта нейтральная частица, если заметна вероятность ее образования, представляет уникальный зонд для изучения магнитных взаимодействий. Целью данной работы являлось изучение мюонной релаксации в твердом гелии и поиск мюония.

Эксперименты под давлением проводились в специальной бронзовой камере, с тонким (0,1 мм) титановым окном, изолированным от корпуса. Окно и внутренний электрод служили для создания в образце электрического поля. Кристаллы ${}^3\text{He}$ (и ${}^4\text{He}$ при $T > 2,2\text{K}$) выращивались в условиях постоянного давления ($\pm 0,025$ бар) при градиенте температур 0,05-0,1 К. Хотя сначала описывается эксперимент с ${}^4\text{He}$, но фактически первым изучался ${}^3\text{He}$, который при такой последовательности не загрязняется другим изотопом после смены газа. Исходный газ фирмы "Isotec" имел $\approx 0,05\%$ примеси ${}^4\text{He}$.

Как известно, амплитуда прецессии мюония в ${}^4\text{He}$ максимальна при температуре 0,8 К [7]. Именно при этой температуре в поперечном магнитном поле $H_{\perp} = 0,7\text{Э}$ измерена зависимость амплитуды мюония от давления. С ростом давления наблюдалось монотонное снижение A_{Mu} от 0,055 до 0,037 при $P = 24,5$ бар, а затем происходило резкое падение A_{Mu} , и в твердой фазе мюоний зарегистрирован не был. Малая вероятность образования мюония в твердом гелии объясняется снижением подвижности зарядов до значения $b \leq 10^{-5} \text{ см}^2/\text{В}\cdot\text{с}$, в результате чего с характерных расстояний между мюоном и электроном $l \approx 10^{-5} \text{ см}$ [8] время образования мюония $\tau_{\text{Mu}} \approx l^3/3be \geq 10^{-4} \text{ с}$ становится много больше времени жизни мюона. Исчезновение мюониевой фракции сопровождается полным восстановлением мюонной компоненты, которая прецессирует практически без затухания $\lambda = 0,002(2) \text{ МГц}$. Малое значение λ свидетельствует как об отсутствии магнитных взаимодействий в твердом ${}^4\text{He}$ (что естественно), так и о том, что не регистрируются мюоны в конструктивных материалах камеры.

Отметим еще одну особенность твердого ${}^4\text{He}$. В жидком гелии (He-I) мюонная деполяризация, возникающая за счет образования мюония, уменьшается или растет в зависимости от направления слабого электрического поля и радикально подавляется сильным полем [8]. В твердом же ${}^4\text{He}$ значение λ остается малым в поле 1,7 кВ/см независимо от его направления. Это весьма существенное обстоятельство указывает на отсутствие магнитных взаимодействий мюона и электронов трека. Важность его станет ясна ниже при анализе мюонной релаксации в ${}^3\text{He}$, имеющем ядерный магнитный момент.

В твердом ${}^3\text{He}$ мюонная прецессия испытывает затухание во всем диапазоне температур от $T_{\text{пл}}$ до 0,37 К и в магнитных полях 15–500 Гс. Характер затухания лучше описывается простой экспонентой $P(t) \propto \exp(-\lambda t)$, характерной для динамики спинов, нежели гауссовой функцией $P(t) \propto \exp(-\sigma^2 t^2)$, отвечающей статической ситуации. Типичные зависимости скорости поперечной релаксации λ от температуры в поле $H_{\perp} = 100\text{Э}$ для двух кристаллов с

молярными объемами $21,3 \text{ см}^3/\text{моль}$ ($P_m = 71 \text{ бар}$) и $22,6 \text{ см}^3/\text{моль}$ ($P_m = 53 \text{ бар}$) приведена на рис.1. С понижением температуры λ уменьшается, имеет минимум при $T \approx 1 \text{ К}$, а затем резко возрастает. На рис.1 показаны также значения λ для кристалла ${}^4\text{He}$ с объемом $20,5 \text{ см}^3/\text{моль}$ ($P_m = 33 \text{ бар}$). Крайне малые λ в ${}^4\text{He}$ дают основание сделать вывод, что мюонная релаксация в твердом ${}^3\text{He}$ возникает только за счет магнитного диполь-дипольного взаимодействия мюона и ядер. Здесь мы имеем редкий случай, когда и химические реакции, и побочные эффекты типа спинового обмена отсутствуют.

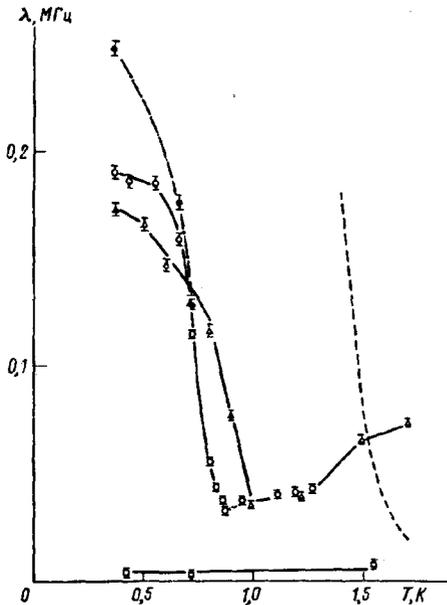


Рис.1. Температурные зависимости затухания мюонной прецессии в твердом ${}^3\text{He}$ с разными молярными объемами (Δ – $21,3 \text{ см}^3/\text{моль}$, \circ – $22,6 \text{ см}^3/\text{моль}$) и ${}^4\text{He}$ (\square – $20,5 \text{ см}^3/\text{моль}$). Символами \bullet обозначены значения λ во внешнем электрическом поле $1,7 \text{ кВ/см}$ для $22,6 \text{ см}^3/\text{моль}$. Пунктирная кривая справа – расчет по активационному закону движения зарядов в твердом ${}^3\text{He}$.

В исследованной области давлений атомы ${}^3\text{He}$ кристаллизуются в решетку ОЦК. Дисперсия магнитного поля в междоузлии невозмущенной решетки имеет значение $\sigma_0 = 0,35 \div 0,4 \text{ мкс}^{-1}$. Оно может быть использовано в качестве нижнего предела скорости релаксации неподвижного мюона. Реальное значение σ , по-видимому, выше из-за деформации кристаллической решетки поляризационным давлением. Наблюдаемые значения скоростей релаксации (рис.1) существенно меньше, чем можно ожидать для покоящегося мюона. Обычно это происходит благодаря спиновой кинетике. В результате перескока спина из одного положения в другое локальные магнитные поля усредняются (динамическое сужение линии), и скорость релаксации снижается, так что $\lambda = \sigma^2 \tau$, где τ – характерное время изменения спиновой конфигурации.

Структура окружения мюона и характер его движения в гелии неизвестны. Если предположить, что мюон перемещается по решетке подобно иону гелия, то его движение описывается известным активационным законом диффузии положительных зарядов. Используя выражение для коэффициента диффузии $D = D_0 \exp(-\Delta/T)$ катионов в ${}^3\text{He}$ [6, 9], оценим характерное время смещения частицы $\tau = d^2/4D$ и скорость мюонной релаксации $\lambda = \sigma_0^2 \tau$. Полагая, что $\sigma_0^2 \approx 0,1 \cdot 10^{12} \text{ с}^{-2}$, а значения $D_0 = 2 \cdot 10^{-4} \text{ см}^2/\text{с}$ и $\Delta \approx 18 \text{ К}$ для молярного объема $21,3 \text{ см}^3/\text{моль}$, легко рассчитать ожидаемую зависимость $\lambda(T)$, которая изображена пунктиром на рис.1. Широкая область относительно небольших значений λ и тенденция к выполаживанию скорости релаксации при низких

температурах на уровень заметно меньший, чем σ_0 , свидетельствуют о том, что наблюдаемое поведение $\lambda(T)$ качественно не согласуется с активационным законом для диффузии положительных зарядов. Иными словами, изменение спиновой конфигурации вокруг мюона происходит за более короткое время, чем ожидаемый перескок примесной заряженной частицы.

В силу квантовой природы кристаллов ${}^3\text{He}$, локальное магнитное поле на μ^+ может изменяться за счет спинового обмена окружающих атомов [10]. В то же время, учитывая малую массу мюона, можно было допустить, что вероятность туннелирования для него не мала, и в равновесии с кристаллом ${}^3\text{He}$ и описывать его кинетику общепринятым прыжковым механизмом [9]. Для диффундирующего по жесткой решетке мюона зависимость скорости перескоков релаксации от величины магнитного поля имеет вид [11]

$$\lambda \approx \sigma^2 \tau \left(1 - \frac{5}{2(1 + \omega^2 \tau^2)} \right) \quad (1)$$

позволяющий независимо определить значение τ и σ . Показав [11], что ширина кривой $\lambda(H)$ определяется условием $\omega_0 \tau = 1$, где $\omega_0 = \gamma H$ — частота ядерной прецессии. Частота мюонной прецессии в 4 раза выше, и аналогичная (1) особенность лежит в области малых полей. На рис. 2 приведены магнитопольевые зависимости $\lambda(H_{\perp})$ кристалла объемом $21,3 \text{ см}^3/\text{моль}$ для некоторых температур в диапазоне $0,4 - 1 \text{ К}$. Через точки проведены параллельные (в логарифмической шкале) кривые, в которых значения λ отличаются лишь масштабным множителем. Легко видеть, что кривые имеют практически одинаковую полуширину ($\approx 30 - 70 \text{ Гс}$). В результате мы приходим к выводу, что τ слабо (не более чем в 2 раза) изменяется с температурой, а десятикратные изменения скорости релаксации обусловлены, по-видимому, изменениями σ — среднего модуля локального поля на мюоне²⁾. Заметим, что значения τ^{-1} составляют $\approx 1 \text{ МГц}$ и близки к характерной частоте обмена J между ${}^3\text{He}$ в решетке [10]. Это может иметь простое объяснение. Поскольку структура ближайшего окружения μ^+ определяется поляризационным притяжением, то вблизи мюона $\tau = 2\pi/J$ слабо зависит от температуры и внешнего давления.

Зависимость $\sigma(T)$ не вписывается в ставшую классической модель [3] собственной диффузии мюона, поскольку она предполагает, что $\sigma = \text{const}$. Другая серьезная трудность применимости этой модели к ${}^3\text{He}$ связана с обнаруженным влиянием электрического поля на спиновую релаксацию. Оказалось, что при низкой температуре *внешнее электрическое поле увеличивает скорость мюонной релаксации*. На рис. 3 приведены зависимости $\lambda(E)$ при $T = 0,37 \text{ К}$ для двух кристаллов с объемами $22,6 \text{ см}^3/\text{моль}$ и $21,3 \text{ см}^3/\text{моль}$. Для зачерченных символов направление E совпадает с импульсом мюона в пучке, а для белых точек поле направлено в обратную сторону. Видно, что в обоих случаях при измерениях направление поля E не существенно. В кристалле с большим мюонным объемом влияние поля гораздо сильнее. Причина этого совершенно не ясна. С увеличением температуры влияние поля ослабевает, и выше 1 К изменения λ лежат в пределах ошибки. На рис. 4 штрих-пунктирной линией показаны значения λ в электрическом поле $1,7 \text{ кВ/см}$. Увеличение λ под действием электрического поля, по-видимому, имеет иную природу, чем в жидком He-I [8] и твердом неоне [12], где эффект имеет противоположный знак

²⁾ Данное утверждение справедливо в случае соблюдения условия $\omega \tau \ll 1$, которое выполняется при самой низкой температуре. Однако, использование более точных формул показало, что такое рассмотрение обеспечивает необходимую точность.

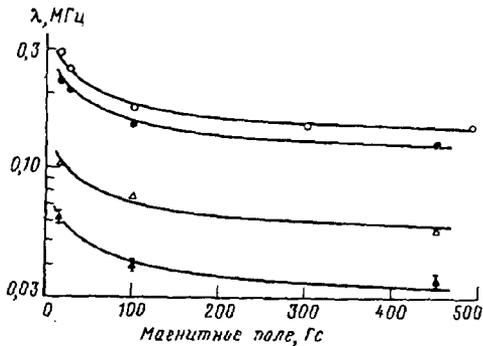


Рис.2. Зависимости скорости поперечной релаксации от величины магнитного поля кристалла с молярным объемом $21,3 \text{ см}^3/\text{моль}$ при температурах: \circ - $0,37 \text{ К}$, \bullet - $0,6 \text{ К}$, Δ - $0,9 \text{ К}$, \blacktriangle - 1 К

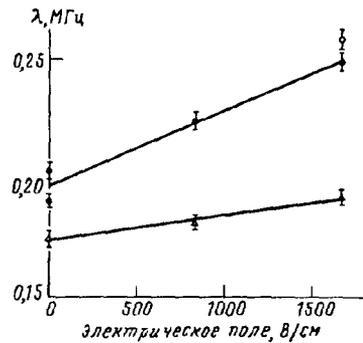


Рис.3. Возрастание скорости релаксации под действием электрического поля при $T = 0,37 \text{ К}$ в двух кристаллах: Δ - $21,3 \text{ см}^3/\text{моль}$, \bullet - $22,6 \text{ см}^3/\text{моль}$, \circ - то же, поле направлено в другую сторону

и вызван взаимодействием мюона с электронами трека. Дополнительными аргументами в пользу неэлектронного происхождения наблюдаемого эффекта является его усиление к низким температурам, где подвижность зарядов снижается, и отсутствие релаксации в твердом ^4He . Ясно, что в случае диффундирующего мюона внешнее электрическое поле может лишь ускорить его движение. Это обстоятельство однозначно исключает из рассмотрения механизм прыжкового "динамического сужения" собственно частицы, поскольку в этом случае с увеличением частоты перескоков λ уменьшается.

Изменение локального поля с температурой может быть связано с перераспределением концентрации ^4He вблизи заряженной частицы или захватом вакансий. Благодаря притяжению к заряду, вакансии могут изменить спиновую конфигурацию вблизи мюона и тем самым параметры релаксации. Предположив существование вакансионной зоны шириной Δ_v , можно качественно описать картину мюонной релаксации. В области высоких температур объемная плотность вакансий экспоненциально убывает - $n \propto \Omega^{-1} \exp(-W/T)$, но локальная плотность слабо зависит от температуры, если время захвата вакансии зарядом $t \sim (4\pi D R_0 n)^{-1}$, где R_0 - радиус захвата, мало. Наличие вакансий снижает локальное магнитное поле, и $\sigma < \sigma_0$, но за счет спинового обмена ядер ^3He $\tau \neq 0$. Когда же t становится длиннее времени релаксации в невозмущенной решетке $1/\sigma_0^2 \tau$, тогда локальная плотность вакансий экспоненциально падает. Этим объясняется резкое возрастание локального поля на мюоне (и скорости релаксации) ниже 1 К . Рост σ продолжается до тех пор, пока плотность вакансий не выйдет на константу. Малое число, не зависящее от температуры, вакансий рождается мюоном в процессе термализации. Заметим, что внешнее электрическое поле изменяет характер рассеяния вакансий. Если приложено электрическое поле, такое что энергия $V = eaE > \Delta_v$, то вакансия не может проникнуть в область $r < a\sqrt{V/\Delta_v}$ [13]. В результате уменьшается плотность вакансий, связанных с мюоном, и σ возрастает.

К сожалению, в простейшем виде вакансионная модель не объясняет большой диапазон изменений σ^2 для неподвижного мюона. Дело в том, что главный вклад в $\sigma^2 = \sum \mu_i^2 / r_i^6$ создают три десятка ближайших ядер ^3He .

Трудно представить, что в этой локальной области концентрация вакансий достигает десятков процентов.

Альтернативным объяснением наблюдаемых эффектов может быть диффузия примеси ^4He , содержание которой в исходном газе, как отмечалось, составляло около $\approx 0,05\%$. Атомы ^3He и ^4He обладают одинаковой поляризуемостью, но благодаря большей массе и, соответственно, меньшей амплитуде нулевых колебаний атом ^4He занимает при равных условиях меньший объем, чем атом ^3He . Поэтому в условиях сильного градиента давления вблизи μ^+ замена ближайших соседей на ^4He энергетически выгодна. Если принять, что при высоких температурах ($T < T_{\text{пл}}$) коэффициент диффузии ^4He в ^3He такой же, как для ^3He в матрице ^4He (при равных молярных объемах), то есть $D > 10^{-8} \text{ см}^2/\text{с}$ [14], тогда равновесная концентрация ^4He в области ближайших координационных сфер может оказаться порядка единицы. При понижении температуры индуцированная вакансиями диффузия становится малоэффективной, так что атомы ^4He уже не успевают перераспределиться, и локальное магнитное поле, а соответственно и λ , начинают быстро расти с понижением температуры. Заметим, что если диффузия ^4He осуществляется посредством вакансий, то эффект электрического поля может быть связан с его описанным выше влиянием на движение вакансий.

Таким образом, температурная зависимость магнитно-дипольной релаксации мюонного спина в твердом ^3He не согласуется с известным активационным законом движения заряженных частиц. Другие возможные причины особенностей релаксации, например диффузия примеси ^4He или захват мюоном вакансий, требуют дополнительных исследований в связи с обнаруженным возрастанием скорости релаксации под действием электрического поля.

Авторы благодарны Ю.М.Кагану, Б.А.Никольскому и И.Г.Ивантеру за полезные обсуждения. Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант 95-02-06016а) и частично фонда Сороса (грант N9F000).

1. В.Г.Гребинник, И.И.Гуревич и др., ЖЭТФ, **41**, 777 (1975).
2. R.F.Kiefl, R.Kadono, J.H.Brewer et al., Phys. Rev. Lett. **62**, 792 (1989).
3. Yu.Kagan, N.V.Prokof'ev, "Quantum Tunneling Diffusion in: Solids", in *Modern Problems in Condensed Matter Science*, Eds A.J.Leggett and Yu.M.Kagan (North-Holland, 1992).
4. А.Ф.Андреев, УФН **118**, 251 (1976).
5. К.О.Кешишев, ЖЭТФ **72**, 521 (1977).
6. D.Marty and F.I.B. Williams, J. de Physique **34**, 989 (1973).
7. Д.Герлах, Э.Морензони, Дж.Шолт, и др., Письма в ЖЭТФ **57**, 154 (1993).
8. Е.Р.Красноперов, Е.Е.Мелихов, D.G.Eschenko et al., Нур. Int. **87**, 1011 (1994).
9. В.Б.Ефимов, Л.П.Межов-Деглин, ФНТ **4**, 857 (1978).
10. R.A.Guyer, R.C.Richardson, and L.I.Zane, Rev. Mod. Phys., **4**, 1971.
11. R.S.Nayano et al., Phys. Rev. B **20**, 850 (1979).
12. Е.П.Красноперов, Е.Е.Мейлихов, А.Н.Пономарев и др. Письма в ЖЭТФ **59**, 721 (1994).
13. А.Э.Мейерович, ЖЭТФ **68**, 1477 (1975).
14. В.Н.Григорьев, Б.Н.Есельсон, В.А.Михеев, ФНТ **1**, 5 (1975).