



ОБЪЕДИНЕННЫЙ ИНСТИТУТ ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ  
ЛАБОРАТОРИЯ НЕЙТРОННОЙ ФИЗИКИ

---

В.И. Лушиков, Ю.В. Таран

1117

ДИНАМИЧЕСКАЯ ПОЛЯРИЗАЦИЯ ПРОТОНОВ  
В ЛАНТАН-МАГНИЕВОМ ДВОЙНОМ НИТРАТЕ  
ФТШ ЯИ, 1963, т. 5, в. 1, с. 233-236.

В.И. Лушиков, Ю.В. Таран

1117

ДИНАМИЧЕСКАЯ ПОЛЯРИЗАЦИЯ ПРОТОНОВ  
В ЛАНТАН-МАГНИЕВОМ ДВОЙНОМ НИТРАТЕ

Дубна 1962 год

### А н н о т а ц и я

Насыщением "запрещенных" переходов ионов  $Ce^{3+}$  в монокристалле  $(Ce, La)_2Mg_3(NO_3)_{12} \cdot 24H_2O$  в поле 3700 эрстед и при температуре  $1,8^\circ K$  получено 170-кратное увеличение поляризации протонов по сравнению с поляризацией при тепловом равновесии. Измерена зависимость времени протонной спин-решеточной релаксации от температуры (в интервале  $1,5^\circ - 1,7^\circ K$ ) и от концентрации церия (в интервале 0,2 - 1%).

Настоящая статья излагает результаты экспериментов по динамической поляризации протонов в монокристалле лантан-магниевого двойного нитрата  $\text{La}_2\text{Mg}_3(\text{NO}_3)_{12} \cdot 24\text{H}_2\text{O}$  с примесью церия  $\text{Ce}$ , возникающей при насыщении электронного парамагнитного резонанса (ЭПР) "запрещенных" переходов ионов  $\text{Ce}^{3+}$ . Метод динамической поляризации ядер (ДПЯ), предложенный Эрбом, Мотчане, Юберсфельдом<sup>/1/</sup> и, независимо, Абрагамом и Проктором<sup>/2/</sup>, позволяет в теоретическом пределе увеличить поляризацию ядер в  $\gamma_{\text{э}}/\gamma_{\text{я}}$ -раз по сравнению с поляризацией при тепловом равновесии (здесь:  $\gamma_{\text{э}}$ ,  $\gamma_{\text{я}}$  - гиромагнитное отношение парамагнитного иона и ядра, соответственно). В частности, для иона  $\text{Ce}^{3+}$  и протона  $\gamma_{\text{э}}/\gamma_{\text{п}} = 605$ .

В настоящее время в различных лабораториях мира интенсивно ведется работа по созданию мишени с высокой степенью поляризации протонов. В частности, в Сакле (Франция) Боржини<sup>/3/</sup> динамическим методом получил поляризацию протонов 19%. Однако создание мишени, пригодной для ядерных исследований, является еще нерешенной задачей, поэтому описание каждой действующей установки и конкретных результатов, полученных на ней, представляет несомненный интерес.

Наша работа является продолжением исследований по динамической поляризации протонов, выполненных ранее на облученном полиэтилене и перекиси третичного бутила<sup>/5/</sup>. В качестве образца взят монокристалл  $(\text{La}, \text{Ce})_2\text{Mg}_3(\text{NO}_3)_{12} \cdot 24\text{H}_2\text{O}$  с различной концентрацией атомов церия, изоморфно замещающих диамагнитный лантан. Кристалл двойного нитрата исследовался ранее в работах<sup>/3,4,10/</sup>. Образцы выращивались из насыщенного раствора  $\text{La}_2\text{Mg}_3(\text{NO}_3)_{12}$  с соответствующей добавкой  $\text{Ce}_2\text{Mg}_3(\text{NO}_3)_{12}$  при температуре  $4^\circ\text{C}$ . Для выращивания кристаллов была взята соль лантана, очищенная от примесей других редкоземельных элементов до 99,99%. Вхождение церия в решетку кристалла не определялось, и концентрация церия в кристалле ориентировочно принимается равной концентрации церия в исходном растворе. Были выращены кристаллы с концентрацией церия  $\lambda = 0,2-1\%$ . Обычный размер кристалла  $15 \times 10 \times 2,5$  мм, вес 700 мг. Исследовались также кристаллы весом 70-100 мг, однако размеры кристаллов существенным образом на результатах не отражались.

Эксперименты были выполнены на установке, описанной в работе<sup>/5/</sup>. Исследуемый образец располагался в резонаторе так, чтобы ось симметрии кристалла  $z'$  была всегда перпендикулярна внешнему магнитному полю  $H_0$  (рис. 1). В этом случае  $g$ -фактор иона  $\text{Ce}^{3+}$  равен  $g_{\perp} = 1,83$ . В резонаторе возбуждались колебания типа  $H_{102}$  с частотой  $\nu_0 = 9440$  МГц. Частота килостронного генератора стабилизировалась относительно собственной частоты резонатора.

Увеличение поляризации протонов в кристалле при насыщении ЭПР определялось по усилению сигнала ядерного магнитного резонанса протонов (ЯМР). Детектором сигнала ЯМР служила модифицированная автодинная схема изменяющейся частоты с автоматической

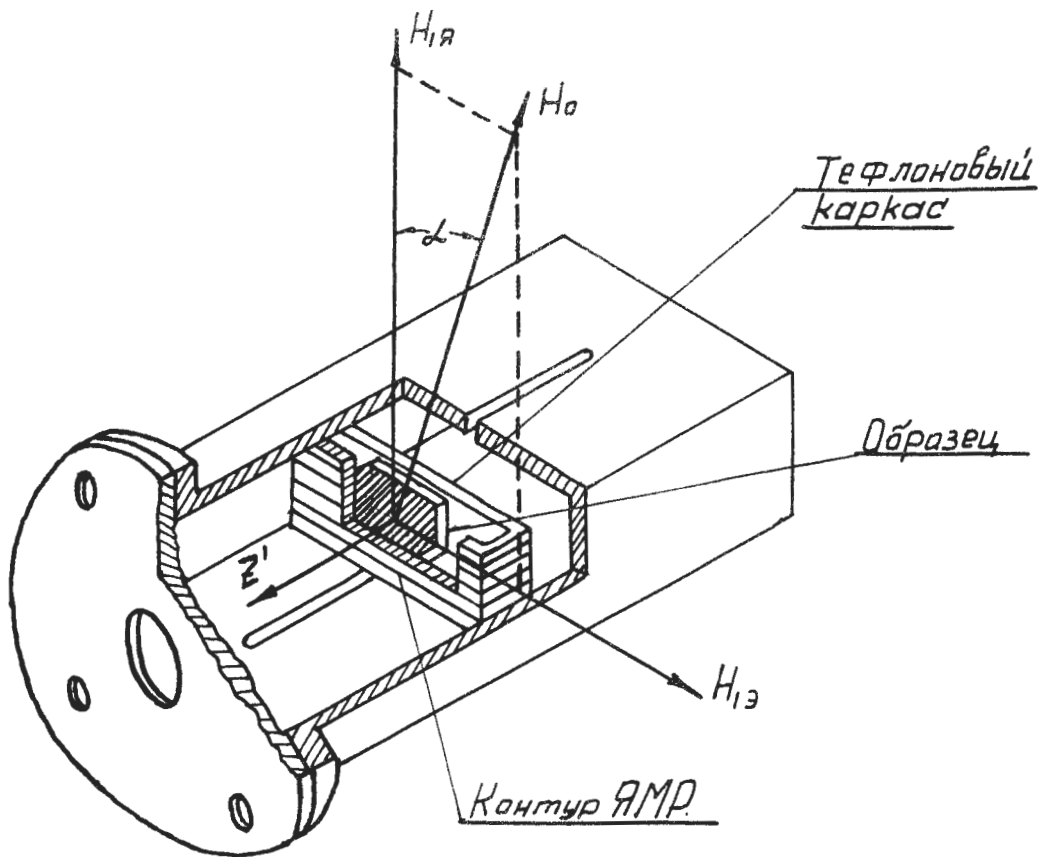


Рис. 1. Расположение образца с контуром в резонаторе.

подстройкой уровня генерации. При амплитуде генерации 0,025 вольта и угле  $\alpha$  между внешним магнитным полем  $H_0$  и ядерным высокочастотным полем  $H_{1Я}$  в пределах  $25^\circ - 60^\circ$  насыщение ядерного резонанса не наблюдалось, и схема с хорошей точностью была линейной. Сигнал ЯМР при модуляции внешнего магнитного поля с частотой 280 гц на глубину 0,8 э записывался после синхронного детектирования на самописец.

В области температур  $1,5^\circ - 1,7^\circ\text{K}$  нами наблюдалось значительное увеличение протонной поляризации и были изучены: 1) зависимость коэффициента усиления протонной поляризации от величины внешнего магнитного поля  $H$  при фиксированной частоте ЭПР для различных концентраций  $\lambda$ , 2) зависимость коэффициента усиления от мощности  $P_c$ , насыщающей ЭПР, при фиксированном значении  $H$  для различных  $\lambda$ , 3) температурная и концентрационная зависимости времени протонной спин-решеточной релаксации  $T_{1Я}$ .

Увеличение поляризации протонов характеризуется коэффициентом динамического усиления  $\eta$ , равного отношению сигнала ЯМР при наличии насыщения ЭПР ионов  $\text{Ce}^{3+}$  к сигналу ЯМР в отсутствие микроволновой мощности, насыщающей ЭПР. Экспериментальная зависимость коэффициента усиления  $\eta$  от поля  $H$  при фиксированной частоте клистрона представляет собой типичную картину, наблюдаемую при динамической поляризации: усиление имеет максимальное отрицательное значение  $\eta_-$  при  $H_- = H_0 - \frac{\Delta H}{2}$  (соответствует переходу с частотой  $\nu_0 + \nu_{Я}$ ), равно нулю при  $H = H_0$  (разрешенный переход с частотой  $\nu_0$ )

и имеет максимальное положительное значение  $\eta_+$  при  $H_+ = H_0 + \frac{\Delta H}{2}$  (соответствует переходу с частотой  $\nu_3 - \nu_{\text{я}}$ ). Полученные значения  $\eta_+$ ,  $\eta_-$  и  $\Delta H = H_+ - H_-$  в зависимости от концентрации церия  $\lambda$  приведены в таблице 1. Напомним, что удвоенная величина сверхтонкого расщепления ЭПР ионов  $\text{Ce}^{3+}$  за счет взаимодействия с протонами в поле  $H_0 = 3690$  э равна  $2g_{\text{я}}\beta_{\text{я}}H_0/g_{\text{Ce}}\beta_{\text{Ce}} \approx 12$  э.

Т а б л и ц а 1

| $\lambda$ %          | 0,2            | 0,5            | 0,8          | 1            |              |            |
|----------------------|----------------|----------------|--------------|--------------|--------------|------------|
| $T^\circ\text{K}$    | 1,57           | 1,6            | 1,5          | 1,67         | 1,5          | 1,65       |
| $\Delta H, \text{э}$ | $12,7 \pm 1,0$ | $16,5 \pm 1,0$ | -            | -            | -            | $22 \pm 2$ |
| $\eta_-$             | -              | $158 \pm 14$   | -            | -            | -            | $70 \pm 5$ |
| $\eta_+$             | $100 \pm 10$   | $170 \pm 15$   | $150 \pm 14$ | $124 \pm 12$ | $100 \pm 10$ | $78 \pm 6$ |

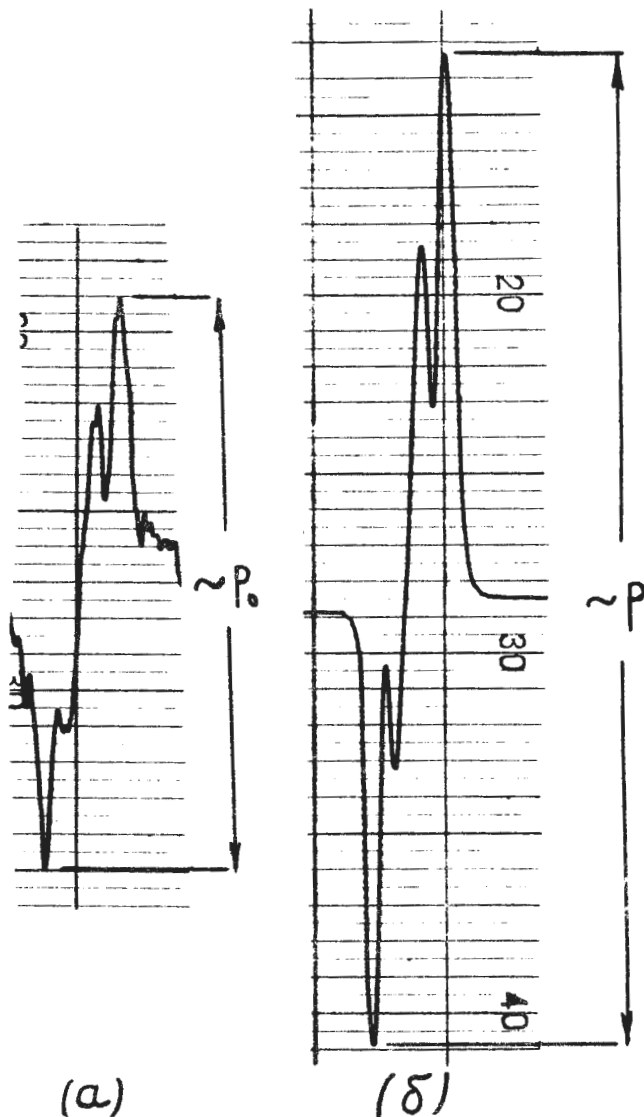


Рис. 2. Усиление сигнала ЯМР при  $1,6^\circ\text{K}$  и  $\lambda = 0,5\%$   $\text{Ce}^{3+}$ .

а) - сигнал ЯМР при тепловом равновесии, относительный коэффициент усиления измерительного тракта  $K=100$ .

б) - сигнал ЯМР после насыщения перехода  $\nu_3 - \nu_{\text{я}}$ ,  $K=1$ . Динамическое усиление поляризации равно  $p/p_0 \approx 170$ .

Кристалл с  $\lambda = 0,5\%$  при  $T = 1,6^\circ\text{K}$  в поле 3700 э дал наибольшее усиление, равное  $\eta = p/p_0 \approx 170$  (рис. 2), что соответствует поляризации протонов  $p \approx 4\%$  для кристалла весом около 700 мг. Полученный коэффициент усиления в 3,5 раза меньше теоретически возможного значения  $\eta/\eta_{\text{теор}} = \gamma_{\text{Ce}}/\gamma_{\text{P}} = 605$ , что объясняется неполным разрешением "запрещенных" переходов. Ширина линии ЭПР примерно равна расстоянию между двумя "запрещенными" переходами (т.е.  $2g_{\text{я}}\beta_{\text{я}}H_0/g_{\text{Ce}}\beta$ ). В этих условиях, согласно<sup>/4/</sup>, следует ожидать  $\eta \approx 0,22 \eta_{\text{теор}} \approx 130$ . При понижении температуры до  $1,5^\circ\text{K}$  наблюдается небольшое уменьшение  $\eta_{\text{макс}}$  (приблизительно на 15-20%). Аналогичное снижение было отмечено Боржини<sup>/3/</sup>. Сравнение наших результатов с ранее опубликованными данными сделано в таблице 2. На рис. 3 представлены зависимости  $\eta$  от  $P_{\text{C}}$  для  $\lambda = 0,5$  и  $0,8\%$  при фиксированном значении  $H' = H_+$  (добротность резонатора  $Q \approx 5000$ ). Сравнение экспериментальной зависимости  $\eta$  от  $P_{\text{C}}$  для  $\lambda = 0,5\%$  с простой феноменологической теорией ДПЯ с учетом спиновой диффузии<sup>/4/</sup>, предсказывающей зависимость

$$\eta = \eta_{\text{макс}} \frac{s_0}{2 + s_0} \frac{(1 + s_0/2)^{1/4}}{k + (1 + s_0/2)^{1/4}},$$

где  $s_0 = (\gamma H_{19})^2 T_{19} T_{29} \sim P_{\text{C}}$  - параметр насыщения,  $k$  - параметр, характеризующий ядерную релаксационную "утечку", вызываемую посторонними парамагнитными примесями, не участвующими в ДПЯ, дает хорошее согласие при  $k = 0,33 \pm 0,03$ ,  $\eta_{\text{макс}} = 184$  и  $s_0 \approx 20 P_{\text{C}}$  /мвт/ (температура  $1,6^\circ\text{K}$ ).

Т а б л и ц а 2

| Вес образца, мг | Концентрация церия $\lambda$ | Температура $T^\circ\text{K}$ | Напряженность внешнего магнитного поля, $H$ , Кэ | Коэффициент динамического усиления, $\eta$ | Поляризация протонов, $p$ % | Ссылки на литературу |
|-----------------|------------------------------|-------------------------------|--|--|-----------------------------|----------------------|
| 20              | 0,5                          | 1,5                           | 13,5   | 200  | 19                          | /3/                  |
| 700             | 0,5                          | 1,6                           | 3,7  | 170  | 4                           | Настоящая работа     |
| 200             | 1                            | 1,7                           | 3,6  | 150  | 3,2                         | /4/                  |
| -               | 5                            | 1,6                           | 3,6  | 60   | 1,4                         | /10/                 |

Мы также изучали переходные явления, имеющие место при внезапном включении и выключении мощности, насыщающей ЭПР. При включении микроволновой мощности рост протонной поляризации идет по экспоненте с постоянной времени или временем поляризации  $\tau_{0\text{я}}$ , которое зависит от температуры  $T$ , концентрации  $\lambda$  и мощности  $P_{\text{C}}$ . При выключении СВЧ мощности разрушение поляризации с хорошей точностью происходит по экспоненте со временем спин-решеточной протонной релаксации  $T_{1\text{я}}$ . Простая теория ДПЯ с учетом спиновой диффузии<sup>/4/</sup> предсказывает, что  $\tau_{0\text{я}}$  и  $T_{1\text{я}}$  связаны соотношением

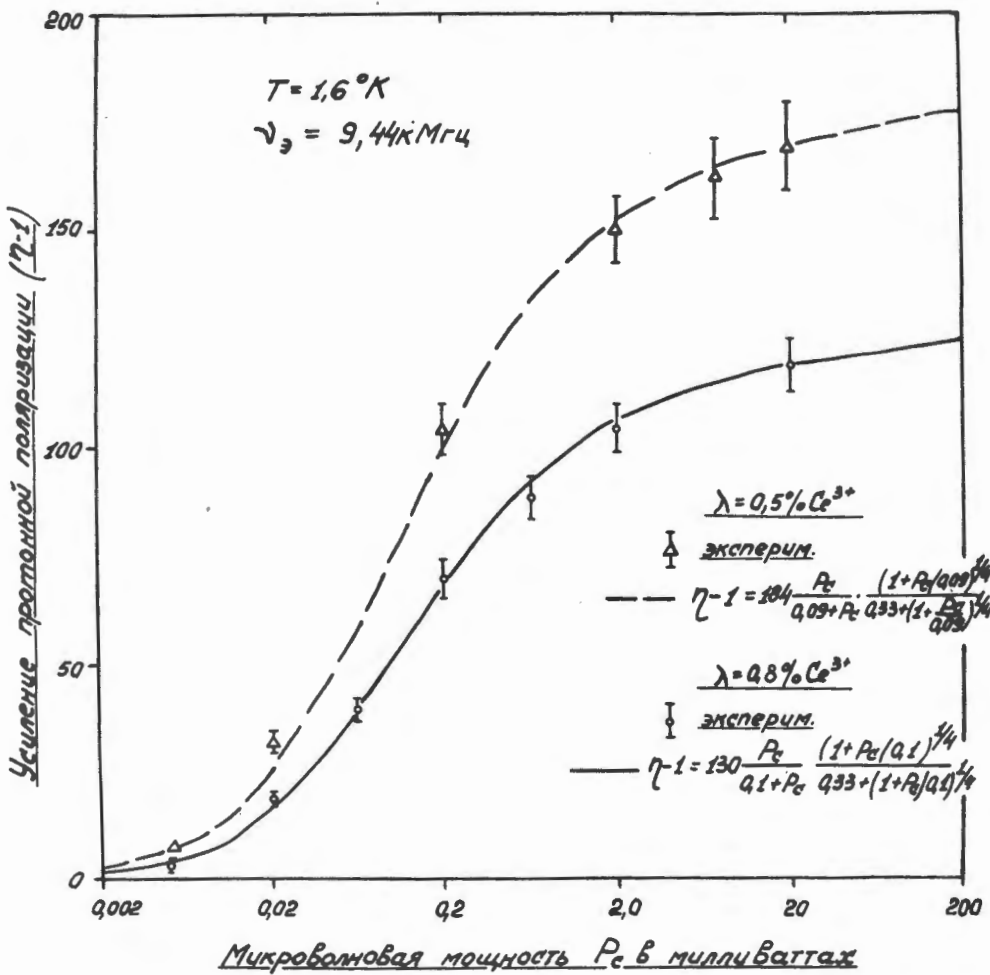


Рис. 3. Зависимость динамического усиления от мощности  $P_c$ , насыщающей ЭПР, при  $1,6^{\circ}K$  и  $Q \approx 5000$ .

$r_{0Я} / T_{1Я} = (k+1) / [k + (1+s_0/2)^{1/2}]$  где  $k$  - указанный выше параметр. Используя значение  $k = 0,33 \pm 0,03$  из зависимости  $\eta$  от  $P_c$ , найдем, что для  $\lambda = 0,5\%$   $r_{0Я} / T_{1Я} = 0,32 \pm 0,02$  при  $s_0 \approx 440$  (такое значение параметра насыщения соответствует  $P_c = 20$  мвт). Эксперимент дает значение  $r_{0Я} / T_{1Я} = 0,35 \pm 0,03$ .

Измерения  $T_{1Я}$  в кристаллах с различной концентрацией церия  $\lambda$  в области температур  $1,5-1,7^{\circ}K$  показали, что: а) при постоянной температуре концентрационная зависимость  $T_{1Я}^{-1} \sim \lambda^{1,1 \pm 0,2}$  в диапазоне  $\lambda$  от 0,2% до 1%  $Ce^{3+}$  согласуется с теорией спиновой диффузии <sup>/4,6/</sup>, предсказывающей  $T_{1Я}^{-1} \sim \lambda$ ; б) для всех изученных концентраций церия температурная зависимость есть  $T_{1Я}^{-1} \sim T^{4 \pm 1}$  в частности, для  $\lambda = 0,5\%$   $T_{1Я} = (1,70 \pm 0,15) \cdot 10^3 T^{-4 \pm 0,5}$  сек.

Для сравнения этих экспериментальных данных с теорией <sup>/4,6/</sup>, необходимо знать температурную зависимость времени электронной спин-решеточной релаксации  $T_{19}$ . Если использовать значения  $T_{19}$ , определенные в работах <sup>/7-9/</sup>, температурная зависимость  $T_{19}$  в области  $1,7^{\circ}-1,5^{\circ}K$  может быть представлена в виде  $T_{19}^{-1} \sim T^3$ . В этом случае следует ожидать для времени протонной релаксации зависимость  $T_{1Я}^{-1} \sim T_{19}^{-4} \sim T^{12}$ , что не



согласуется с нашими данными. Отметим, что Боржини<sup>/3/</sup> получил  $T_{IЯ}^{-1} \sim T^2$  от 1,5° до 2,1°К, а Джеффрис и Ляйфсон<sup>/4/</sup>  $T_{IЯ}^{-1} \sim T^2$  в области температур 1,6–2,4°К. Причина такого расхождения остается неясной.

Авторы выражают благодарность доктору физико-математических наук Ф.Л. Шапиро за внимание и интерес к работе, кандидату физико-математических наук А.А. Маненкову, оказавшему существенную помощь в успешном проведении экспериментов, В.Я. Ханмову-Малькову за предоставление кристаллов и А.В. Кессениху за участие в некоторых измерениях.

#### Л и т е р а т у р а

1. E. Erb, I.L. Mochane, I. Uebersfeld, Compt. rend., 246, 2121 (1958).
2. A. Abragam, W.G. Proctor, Compt. rend. 246, 2253 (1958).
3. M. Borghini, Proceedings of the 7th International Conference on Low Temperature Physics, University of Toronto Press – North Holland, P. 152 (1961).
4. O.S. Leifson, C.D. Jeffries, Phys. Rev. 122, 1781 (1961).
5. В.И. Лушиков, А.А. Маненков, Ю.В. Таран. ФТТ, 3, 3503 (1961).  
Препринт Д-7-60, Дубна (1961); препринт Р-831, Дубна (1961).
6. Г.Р. Хуцишвили. Труды института физики АН Гр.ССР, 4, 3 (1956).
7. C.V.P. Finn, R. Orbach, W.P. Wolf, Proc. Phys. Soc, 77, 261 (1961).
8. J.A. Cowen, D.E. Kaplan, Phys. Rev. 124, 1098 (1961).
9. R.H. Ruby, H. Benoit, C.D. Jeffries, Technical Report N= 10, University of California, Berkeley (1962); Abstract Phys. Rev. Lett, 8, N=9 (1962).
10. M. Abraham, M.A.H. McCousland, F.N.H. Robinson, Phys. Rev. Lett, 2, 449 (1959).

Рукопись поступила в издательский отдел  
27 октября 1962 года.