

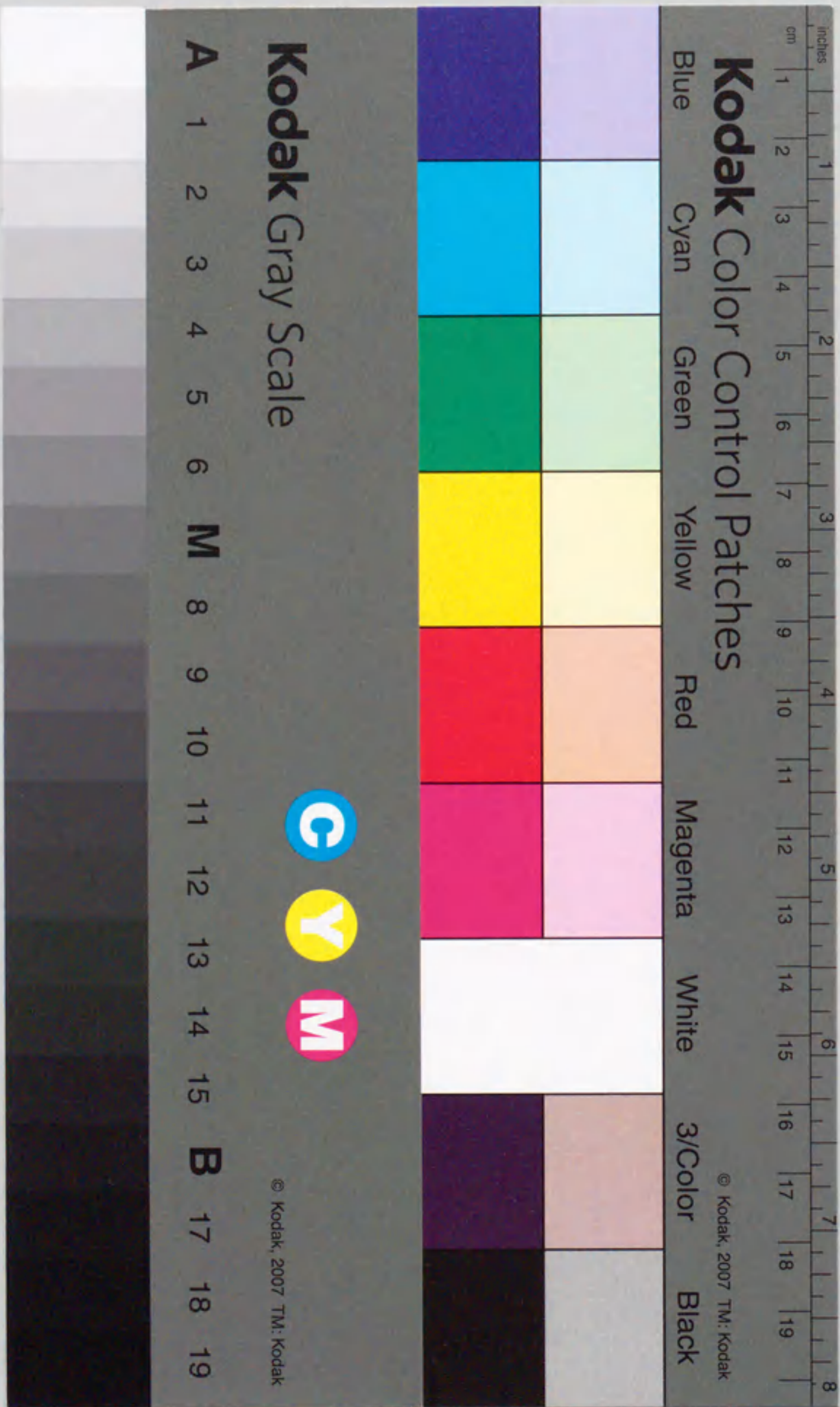
学位論文

静磁化及び交流帯磁率測定による  
h c p 固体  $^3\text{He}$  の核磁性の研究

1991年

名古屋大学大学院  
理学研究科物理学専攻

矢野 英雄



①

報告番号 甲第 2395 号

静磁化及び交流帯磁率測定による  
h c p 固体  $^3\text{He}$  の核磁性の研究

矢野英雄

6882

## 要旨

固体  $^3\text{He}$  は、絶対零度においても零点振動のために隣どうしの原子がその位置を交換する、ユニークな系である。さらに  $^3\text{He}$  原子はスピンのフェルミ粒子であるために、奇置換に対して系の波動関数が反対称になり、その結果スピン間に相互作用が生じる。交換は、2粒子間の他に3つ以上の粒子間でも起こる。それぞれの交換の起こりやすさは固体  $^3\text{He}$  の結晶構造に依存し、交換相互作用の大きさは、原子間隔が狭いと交換も起こりにくくなるために、モル体積（1モルあたりの体積）に依存する。

固体  $^3\text{He}$  は低温で2種類の構造、体心立方格子（bcc）と六方稠密構造（hcp）を持つ。モル体積の大きいbcc  $^3\text{He}$  は交換相互作用が大きいため核磁気秩序相まで冷却され、数々の研究からその核磁性は明らかになってきた。一方、モル体積の小さいhcp  $^3\text{He}$  は交換相互作用が小さいために、まだ核磁気秩序相まで冷却されたことがなく、あまりその核磁性の研究は行われていない。

本研究では、hcp  $^3\text{He}$  の核磁性を明らかにするために、静磁化と交流帯磁率を最低温度  $38\ \mu\text{K}$  から  $6\ \text{mK}$  の温度範囲で測定した。測定温度範囲では核磁気相転移は起こらなかった。

静磁化は、測定温度範囲で高温展開式  $C_1 (T - \theta + B/T + \dots)^{-1}$  に従い、 $18.34$  から  $19.29\ \text{cm}^3/\text{mole}$  のモル体積範囲でワイス温度  $\theta$  を得た。また  $19.29\ \text{cm}^3/\text{mole}$  については  $B$  も求めた。ここで、 $C_1$  はキュリー定数、 $T$  は温度。 $\theta$  と  $B$  は交換相互作用によって生じ、それぞれ相互作用の1次と2次に比例する。 $\theta$  は、

モル体積を  $V$  ( $\text{cm}^3/\text{mole}$ ) と置くと、 $A(V/19)^{\gamma}$  に従って変化し、 $A = 17.4 \pm 0.2 \mu\text{K}$ 、 $\gamma = 18.4 \pm 0.6$  の結果を得た。 $\theta$  が正であることから、hcp  $^3\text{He}$  の核磁性では、3体交換相互作用が支配的であるが、 $\theta$  と  $B$  の関係から、4体交換相互作用も3体交換相互作用の25%あることを示した。この結果は、hcp  $^3\text{He}$  の核磁気秩序構造は単純な強磁性的スピン配列ではなく、もっと複雑なスピン配列をとる可能性を示唆している。

交流帯磁率からゼーマン系と交換系間の緩和時間を得た。緩和時間は、高温では一定であるが、低温では温度が下がるにつれて上昇する結果になった。この低温での現象は、核磁気相転移温度近傍で起こる臨界現象と考えられる。固体  $^3\text{He}$  における緩和時間の臨界現象の観測はこれが初めてである。

目次

1. 序論	1
2. 実験装置	6
2-1. 2段核断熱消磁冷凍機	6
2-2. 測定回路とセル	9
2-3. SQUIDシステム	11
2-4. 温度計	13
3. 渦電流の計算	15
4. 感度の計算	18
5. 測定方法	22
6. 静磁化の結果と議論	24
7. 交流帯磁率の結果と議論	30
8. まとめ	36
謝辞	38
参考文献	39
表	41
図説	43

## 1. 序論

固体  ${}^3\text{He}$  は、 ${}^3\text{He}$  原子の質量が軽く零点振動が大きいので、絶対零度においても隣どうしの粒子が位置を交換する。原子間には、パウリの原理により 2 原子の電子軌道どうしが重なると強い斥力が働き、原子間距離が大きいところでは電子密度の揺らぎによって弱い引力、ファン・デル・ワールス力が働く。これらの力は、核スピンの向きを変えないので、原子はスピンの向きを保ったまま交換する。N 個の粒子の固体  ${}^3\text{He}$  の波動関数  $\Phi_S$  は、軌道座標の波動関数を  $\psi^r$ 、スピン座標の波動関数を  $\psi^s$  と置くと、核スピンの向きに依存する相互作用<sup>1)</sup> を無視すれば、 $\psi^r\psi^s$  で表される。さらに、 ${}^3\text{He}$  はスピン  $\frac{1}{2}$  のフェルミ粒子であるため、パウリの原理によって奇置換に対して  $\Phi_S$  は反対称になる。従って  $\Phi_S$  は

$$\begin{aligned}\Phi_S(r_1\sigma_1\cdots r_N\sigma_N) \\ = (N!)^{-1/2} \sum_P (-1)^P P \psi^r(r_1\cdots r_N) \psi^s(\sigma_1\cdots\sigma_N)\end{aligned}\quad (1.1)$$

と与えられる。ここで、P は N! 通りの置換の 1 つを表し、

$(-1)^P$  は奇置換の時 -1、偶置換の時 +1 を表す。 $\psi^r$  は対称か反対称かによって交換ハミルトニアンに対する固有エネルギーが異なり、このエネルギー差がスピンの交換による交換相互作用として現れる。スピンの交換ハミルトニアン  $\mathcal{H}$  は、

$$\mathcal{H} \psi^s = \sum_a J_a (-1)^{P_a} P_a^s \psi^s \quad (1.2)$$

と表される。ここで a は任意の交換をあらわし、 $P_a^s$  はスピン座標

の交換をあらわす。また、 $J_a$ は交換相互作用で、Thoulessによって  $J_a$ は負である事が示された。<sup>2)</sup>

固体  $^3\text{He}$ の原子交換では、原子間の斥力のために、交換する原子に対してまわりの原子は壁となり交換を妨げる。このために2粒子が交換するよりも3つ以上の粒子が環状に交換する方が起こりやすい。この時、式(1.2)の  $(-1)^{P_a} P_a^s$ は、パウリのスピン演算子  $\sigma$  を用いて次の様に表される。

$$\begin{aligned} \text{2体: } (-1)^{P_a} P_a^s &= -P_{ij} \\ &= -(1 + \sigma_i \sigma_j) / 2 \end{aligned} \quad (1.3)$$

$$\begin{aligned} \text{3体: } (-1)^{P_a} P_a^s &= P_{ijk} + P_{ijk}^{-1} \\ &= (1 + \sigma_i \sigma_j + \sigma_j \sigma_k + \sigma_k \sigma_i) / 2 \end{aligned} \quad (1.4)$$

$$\begin{aligned} \text{4体: } (-1)^{P_a} P_a^s &= -(P_{ijkl} + P_{ijkl}^{-1}) \\ &= -(1 + \sum_{m < n} \sigma_m \sigma_n + G_{ijkl}) / 4 \end{aligned} \quad (1.5)$$

ここで  $\{i, j, k, l\}$  は各粒子の番号で  $i < j < k < l$ 、 $\{m, n\}$  は、 $\{i, j, k, l\}$  の任意の2つの組み合わせ、また、

$$\begin{aligned} G_{ijkl} &= (\sigma_i \sigma_j) (\sigma_k \sigma_l) + (\sigma_i \sigma_l) (\sigma_j \sigma_k) \\ &\quad - (\sigma_i \sigma_k) (\sigma_j \sigma_l) \end{aligned} \quad (1.6)$$

である。式(1.3)(1.4)から2体交換ハミルトニアン、3体交換ハミルトニアンはハイゼンベルグモデル

$$\mathcal{H} = -(J/2) \sum_{i < j} \sigma_i \sigma_j \quad (1.7)$$

になり、 $J_a$ が負であることに留意すれば、2体は反強磁性、3体は強磁性になる。また4体交換ハミルトニアンは、ハイゼンベルグモ

デルよりも複雑なハミルトニアンになる。これらの交換相互作用の大きさは、固体  $^3\text{He}$  の結晶構造の違いにより起こりやすい交換も変わるため、構造に依存している。また、1モル当たりの体積（モル体積）が小さくなるにつれて、原子間隔が詰まってくるために交換が起こりにくくなり、交換相互作用は急激に小さくなる。

3.4 MPa から 10.6 MPa の圧力で存在する体心立方構造（bcc）の固体  $^3\text{He}$  はこれまでに多くの実験がなされ、その核磁性が明らかにされてきた。<sup>3)</sup> 3.4 MPa の bcc  $^3\text{He}$  は約 1 mK で 1 次の磁気相転移をおこし、その核磁気秩序相は、単純な up-down スピン配列を持つ反強磁性ではなく、up-up-down-down のスピン配列を持つことが明らかになった。また 0.4 T 以上の磁場中では擬強磁性的な秩序相になることが明らかになった。これらの結果は、2 体交換相互作用だけのハイゼンベルグモデルでは説明できない。Rogerらは、2 体、3 体、4 体交換相互作用までを考えた多体交換モデルによって、実験結果がよく説明できることを示した。<sup>4)</sup> bcc  $^3\text{He}$  の多体交換を図 1-1 に示す。さらにこれらの交換相互作用を軌道座標の波動関数  $\psi^r$  の固有エネルギーから計算する試みも行われ、Ceperley-Jacucci のモンテカルロ法による数値計算によって、5 体以上の交換相互作用もかかわっていることが明らかになった。<sup>5)</sup>

モル体積の異なる bcc  $^3\text{He}$  の実験結果から、交換相互作用はモル体積を  $V$  とするとき  $V^{-\gamma}$  に比例し、各交換相互作用の  $\gamma$  は 1.8 の前後 10% の範囲に入ることが明らかになってきた。<sup>3)</sup> 従って、3.4 MPa の圧力の bcc  $^3\text{He}$ 、 $V = 24.2 \text{ cm}^3/\text{mole}$  の交換相



相互作用に対して、10 MPaのbcc  $^3\text{He}$ 、 $V = 20 \text{ cm}^3/\text{mole}$ の交換相互作用の大きさは0.03倍になる。このために、10 MPaのbcc  $^3\text{He}$ の相転移温度は30  $\mu\text{K}$ 前後と予想され、相転移前後の測定が3.4 MPaのbcc  $^3\text{He}$ に比べてきわめて困難になる。

10.6 MPa以上の圧力で存在する六方稠密構造(hcp)の固体 $^3\text{He}$ は、bcc  $^3\text{He}$ と比べて交換相互作用が小さいために、まだ核磁気相転移温度以下まで冷却されたことがなく、その核磁性はあまり明らかにはなっていない。これまでに行われた実験は、0.1 K以上の温度での核磁気共鳴(NMR)による緩和時間の測定<sup>6)</sup>と、43  $\mu\text{K}$ から0.4 mKの温度範囲での磁化測定<sup>7)</sup>がある。NMRの実験から、交換ハミルトニアンに最隣接交換のハイゼンベルグモデルを仮定した有効交換相互作用の大きさと、そのモル体積依存性が明らかになった。その結果によると、13 MPaのhcp  $^3\text{He}$ 、 $V = 19 \text{ cm}^3/\text{mole}$ の交換相互作用の大きさは、3.4 MPaのbcc  $^3\text{He}$ の0.005倍になる。またhcp  $^3\text{He}$ の有効交換相互作用は $V^{1/3}$ に比例する。

磁化測定の実験から、磁化 $M_s$ の温度変化がキュリー・ワイス則

$$(M_s/H)^{-1} = C_1^{-1}(T - \theta) \quad (1.8)$$

に従い、ワイス温度 $\theta$ が正の強磁性的な振る舞いを示すことが明らかになった。ここで、 $H$ は磁場、 $C_1$ はキュリー一定数、 $T$ は温度。この結果は、hcp  $^3\text{He}$ の支配的な交換相互作用は3体交換であるという、Rogerの理論的予想と一致している。<sup>8)</sup>

hcp  $^3\text{He}$ の交換相互作用が3体交換だけであると仮定すると、hcpの基底面内の2種類の3体交換相互作用を $J_T$ 、 $J_T^*$ 、基底面

間の3体交換相互作用を  $J_T'$  と置くと (図6-5参照)、 $\theta = -3$   
( $J_T + J_T^* + 6 J_T'$ ) となる。またNMRの測定から得た有効交  
換相互作用  $J_{eff}$  は、 $J_{eff} = -(J_T + J_T^* + 6 J_T') / 2$  と与え  
られる。<sup>8)</sup> このことから、 $|J_{eff}|$  と磁化測定から得た  $\theta$  を比較する  
ことができる。 $|J_{eff}|$  が  $V^{19}$  に比例するのに対し、 $\theta$  は  $V^{11.1}$  に従  
って変化し、 $\theta$  のモル体積変化は  $|J_{eff}|$  に比べてかなり小さい。

我々はh c p 固体  $^3\text{He}$  の静磁化及び交流帯磁率を最低温度38  
 $\mu\text{K}$  から6 mKの温度範囲で測定した。モル体積18.34から  
19.29  $\text{cm}^3/\text{mole}$  の範囲で静磁化測定からワイス温度  $\theta$  を決定し、  
これまでの測定結果と比較した。また19.29  $\text{cm}^3/\text{mole}$  の試料につ  
いては、磁化の高温展開式の  $\theta$  の次の項の係数Bも決定した。交流  
帯磁率測定からゼーマン-交換緩和時間を得た。これらの結果から、  
h c p  $^3\text{He}$  の核磁性を明らかにする。

## 2. 実験装置

### 2-1. 2段核断熱消磁冷凍機

試料の冷却は $^3\text{He} - ^4\text{He}$ 希釈冷凍機と2段核断熱消磁冷凍機で行った。クライオスタットを図2-1に示す。1段目核ステージにはPrNi<sub>5</sub> 2.6モルを、2段目には16.7モルの銅(磁場中では8モル)を用いた。初期磁場は、1段目核ステージは5.4 T、2段目核ステージは7.2 T。PrNi<sub>5</sub>はenhanced核スピン系の物質で、5.4 T、7 mKまで冷却すると核スピンのエントロピーの99%を奪うことができる。銅ステージの強度をもたせるために図2-1に示す断面の形状にした。

試料を低温まで冷却するためには、冷凍機や熱リンクの熱伝導を考えなければならない。mK以下の温度領域ではフォノンによる熱伝導はほとんど期待できず、金属の伝導電子によって熱が運ばれる。電子による熱伝導率 $\kappa$ は電気伝導率 $\sigma$ と関係し、ウィーデマン・フランツ則

$$\kappa = \sigma L T \quad (2.1)$$

で与えられる。ここでLはローレンツ数で、 $2.45 \times 10^{-8} \text{W} \Omega / \text{K}^2$ 。この式から明らかのように、熱伝導率を大きくするためには電気伝導率を大きくすればよい。

銅ステージは高純度の無酸素銅(99.96%以上)のブロックから切り出し、ブロック内の格子欠陥を少なくするために、 $5 \times 10^{-5} \text{Torr}$ 圧力中で、1000°C、40時間アニールした。そ

の結果、数K以下の温度で残る電気抵抗に対する室温での抵抗の比、残留抵抗比(RRR)は2800になった。この値から、銅ステージ中央から端の間の残留電気抵抗は6.6 nΩと見積もられる。従って熱抵抗は式(2.1)から $0.27/T$  (K/W)となり、50 μKの温度で銅ステージの端から中央へ1 nWの熱流があった時、5 μKの温度差を生じることに相当する。

熱抵抗はセルと銅ステージの接触部分にも生じる。図2-2に示すように、セルと銅ステージは銀フランジを介して結合している。銅ステージと一体になっている金メッキした銅フランジと、銀フランジを、10本のステンレス製ボルトで2 N mのトルクで締め付けている。また銀フランジとセルは銀銅合金製ボルト7本で締め付けている。金属と金属をボルトで締め付ける時、金属間の電気抵抗はボルトのトルクに反比例する。<sup>9)</sup> 例えば、2 N mのトルクのボルト1本で締め付けた時、金メッキした銅同士では20 nΩ、銀、白金間では100 nΩ。従って、銅フランジ銀フランジ間の電気抵抗は2 nΩから10 nΩと見積もられ、熱抵抗は $0.08/T$ から $0.41/T$  (K/W)となる。また銀フランジとセル間のボルトのトルクは測定していないが、通常のトルク0.5 N mで締め付けているとすると、銀フランジとセル間の電気抵抗は10 nΩから60 nΩと見積もられ、熱抵抗は $0.41/T$ から $2.4/T$  (K/W)となる。結局セルと銅ステージ間の熱抵抗は $0.5/T$ から $2.8/T$  (K/W)と見積もられる。この値は銅ステージ内部での熱抵抗に比べてかなり大きく、セルと銅ステージ間の温度差をつけないためにセルからステージへの熱流を極力少なくしなければならない。

セルからステージへの熱流の原因は、後述するように交流帯磁率測定に伴う渦電流による発熱と、測定のためのリード線や熱絶縁に用いている物質を通して入る高温部からの熱がある。渦電流による発熱の測定値は3 pW以下で、これによって生じるセルとステージ間の温度差は50  $\mu$ Kの時0.1  $\mu$ K以下になり、ほとんど問題はない。一方高温部からの熱流入は数百pWと見積もられ、この熱がセルから銅ステージに流れると数十 $\mu$ Kの温度差を生じる。我々は、熱流入がセルへ入らないように、リード線や熱絶縁物質からステージへ直接熱が流れる熱リンクを取り付けた。

希釈冷凍機と1段目核ステージ間の熱スイッチには、純度99.999%、RRRが14100以上のインジウムを用いた。常伝導状態の電子は熱を運ぶが超伝導状態の電子は熱を運ばなくなり、超伝導金属の熱伝導はフォノンによる。この性質を熱スイッチに利用している。インジウムの超伝導転移温度 $T_c$ は3.4 K、臨界磁場 $H_c$ は293 Oe。我々の用いたインジウムの超伝導状態の熱伝導率 $\kappa_s$ と常伝導状態の熱伝導率 $\kappa_n$ の比は、 $\kappa_n/\kappa_s \approx 280 T^{-2}$ である。インジウムは、その電気4重極モーメントのために大きな核比熱を持ち、冷却の妨げになる。スイッチの大きさは5 mm  $\times$  5 mm、厚さ1 mmあり、10 mKから5 mKまで冷却するときに必要なエントロピーは50  $\mu$ J/Kである。この値は、1段目核ステージの除去エントロピー量38 J/Kに比べて十分小さい。

1段目核ステージと2段目ステージ間の熱スイッチにはスズを用いた。スズの $T_c$ は3.7 K、 $H_c$ は306 Oe。またRRR = 7600の時、 $\kappa_n/\kappa_s \approx 370 T^{-2}$ 。スズの核の84%はスピン

0で16%はスピントであるので、インジウムのような大きな核比熱は持たない。しかしスズは低温で金属状の $\beta$ スズからぼろぼろになる $\alpha$ スズへ転移する。室温あるいは窒素温度(77 K)以下では転移速度は非常に遅いが、 $-48^\circ\text{C}$ で転移速度が極大になり1日程度の時間で $\alpha$ スズに転移する。このために室温から低温へクライオスタットを冷却するとき、あるいは低温から室温へ暖めるときは注意しなければならない。

核ステージを2段にする利点は、1段目をヒートポンプとして使用できることである。我々の装置の冷却例を図2-3に示す。希釈冷凍機で、励磁した2つの核ステージを7 m Kまで冷却する。次に1段目核ステージを消磁し、2段目核ステージを4.1 m Kまで冷却する。一旦1段目と2段目の熱スイッチを切り、1段目を再び励磁し、希釈冷凍機で7 m Kまで冷却する。次に1段目を消磁し、4.1 m Kで熱スイッチを入れ、2段目を3.1 m Kまで冷却する。結局、この方法によって、2段目核ステージの40 J/Kのエントロピーを除去することができる。最後に、2段目核ステージを70 m Tまで消磁し、試料を最低温度まで冷却する。

## 2-2. 測定回路とセル

測定回路を図2-4に示す。交流帯磁率は、セルに巻いた1次コイルと2次コイルの相互インダクタンスを測定することによって得る。相互インダクタンス $M = M' + i M''$ は、図2-4のレシオトランスの $\alpha$ 、 $\beta$ 、 $\lambda$ をヌルディテクターが0になるようにバランス

させることにより次式

$$M' = m (R_M / R_m) \alpha \lambda \quad (2.2)$$

$$M'' = m \omega C_m R_M \beta \lambda \quad (2.3)$$

から得る。ここで  $m$ 、 $R_M$ 、 $R_m$ 、 $C_m$  は回路図 2-4 の値をとる。ヌルディテクターには、超伝導量子干渉計 (SQUID) とロックインアンプを組み合わせて使用した。SQUID を用いることで感度を上げることができる。2 次コイルのループは超伝導線を用いているので、一定磁場のもとで温度変化する試料の磁化を 2 次コイルと鎖交する磁束の変化として、SQUID によって測定できる。この磁束変化から試料の静磁化を得た。

セルを設計するにあたって、次のことを考慮する必要がある。1 つは  $h c p$   $^3\text{He}$  を測定するためには 20 MPa 以上の耐圧が必要なこと、もう 1 つは数十  $\mu\text{K}$  以下の温度まで試料を冷却できることである。このために高純度の銀や銅を使う必要があるが、振動磁場によって生じる渦電流の影響を考慮しなければならない。3 章で述べるように、渦電流は発熱や振動磁場の減衰を引き起こす。我々は、渦電流の影響を小さくするために、2 種類の金属を用いた複合セルを開発した。

セルを図 2-5 に示す。試料を冷却するための内部金属には 99.99% の銀を、外部金属には銀 90% 銅 10% の合金を用いた。セルは試料空間と、セルそのものの帯磁率の影響を補償するためのダミー空間を持つ。外部金属は、外径 9.7 mm、内径 5.0 mm、長さ 65 mm、穴の深さ 30 mm の形状をしている。内部金属は中心軸から 1.5 mm 偏芯した位置に内径 2 mm、深さ 10 mm の穴を 3 つ持つ。穴を

一周する渦電流が生じないように、穴の側面にスリットを入れている。内部金属は860℃、22時間アニールし、RRRは2000。試料と内部金属の接触面積を増すために、700Å径の銀微粒子を焼結した。内部金属と外部金属は電子ビームで溶接した。試料の体積は0.045 cm<sup>3</sup>、試料とセルの境界面積は1.1 m<sup>2</sup>、耐圧は室温で23 MPa以上ある。

1次コイルとして、0.1 mm径のキプロニケルクラッドのNbTi線を内径9.7 mm、長さ25 mm、183ターン巻いている。2次コイルとして、0.1 mm径Nb線を径11 mm、長さ2.0 mm、12ターン巻いたコイルを試料空間に、これとは逆巻きのコイルをダミー空間に配置し、ツイストペア線でrf-SQUIDに結合している。セルは、外径14.0 mm、内径13.0 mmのチタン製の超伝導シールド内に置かれている。このシールドは、外部磁場の影響を防ぐとともに、静磁化の測定のための磁場をトラップするためにも使われる。

### 2-3. SQUIDシステム

SQUIDシステムを使う上でのポイントは、核ステージの高磁場にフラックスループをさらさないようにすることにある。一旦フラックスループが高磁場にさらされると、消磁後数時間は大きなノイズのために測定することができない。そこで我々は、フラックスループが高磁場にさらされないように、セルを2段階核ステージの下に、SQUIDセンサーをクライオスタット底部に配置した。(図2-1)



SQUIDセンサーをクライオスタット底部に置いたため、センサーとSQUIDコントローラーのプリアンプとの間のrfケーブルを延長しなければならない。使用したSQUIDシステムは、SHE社(San Diego, California)製の19MHzバイアスのrf-SQUIDで、rfケーブルの長さは70cmある。一方、我々のクライオスタットの上部から底部までの長さは2.8mある。rfケーブルを延長するとケーブル内の電気容量が増えるために、同調することができなくなる。Bradshaw-Prattは、ケーブルを半波長の整数倍にとることで同調できることを示した。<sup>10)</sup> 同軸ケーブル3C2V(75Ω、5.8mm径)の半波長は19MHzのとき5.2mで、この長さまで延長することによってSQUIDシステムを使用することができる。使用したrfケーブルを表Iに示す。使用したケーブルのうち、クライオスタット外部のケーブルは他のケーブルとインピーダンスが異なる。インピーダンスが50Ωの3D2Vと比較して3C2Vの方が若干ノイズが小さかったので、3C2Vを使用した。

SQUIDセンサーを液体ヘリウム中に置くと、泡によって熱電効果や振動によるノイズが入る。常流動ヘリウム中にセンサーを置くとノイズが $2.6 \times 10^{-4} \phi_0 / \sqrt{\text{Hz}}$ に対して、泡のなくなる超流動ヘリウム中では $1.6 \times 10^{-4} \phi_0 / \sqrt{\text{Hz}}$ とノイズが40%軽減した。ここで $\phi_0$ は磁束量子で $2.07 \times 10^{-15} \text{Wb}$ 。我々は、泡の影響を避けるためにSQUIDセンサーを真空層に置き、センサーを4.2Kに保つために熱リンクを取り付けた。

SQUIDシステムの三角波のシグナルとノイズは、延長前ではそれぞれ120mV<sub>p-p</sub>、15mV<sub>p-p</sub>に対し、延長後は80

mV<sub>p-p</sub>、20 mV<sub>p-p</sub>となった。また延長後のSQUIDのノイズは、 $2.7 \times 10^{-4} \phi_0 / \sqrt{\text{Hz}}$ だった。

#### 2-4. 温度計

温度測定には、Pt-パルスNMR温度計と<sup>3</sup>He融解圧温度計を用いた。NMR温度計は、静磁場に置かれたPtの核スピンのよる磁化をパルスNMRによって測定し、その磁化がキュリー則( $T^{-1}$ に比例)に従うことから温度を決定している。核スピン間の相互作用が大きいと温度が下がるにつれてキュリー則からはずれてくるが、Pt核の相互作用は100 nK以下と見積もられ、我々の測定温度範囲38 μK以上ではキュリー則に従うとしてよい。Pt試料は外径20 μmのPt線3200本をPt板にアルゴンアーク溶接し、530°C、1時間アニールした。アニール後、NMRパルスによる渦電流発熱を抑えるため、Pt線にSiOを蒸着し線間を絶縁した。NMR静磁場用マグネットは0.1 mm径キプロニッケルクラッドNbTi超伝導線で作成し、磁場の一様性は中心5 mmの範囲で0.15%、6 mmで0.3%である。NMRパルス発生回路及びNMRシグナル検出回路とそれらの回路をマイクロコンピュータでコントロールする装置を開発した。<sup>11)</sup> この装置によって温度の自動測定を可能にしている。

NMR温度計で温度を決定するためには、測定シグナルに含まれるオフセットと $T^{-1}$ の比例定数を求めなければならない。これらの定数を決定するために、<sup>3</sup>He融解圧温度計を用いて校正した。

$^3\text{He}$  融解圧温度計を図 2-6 に示す。この温度計は  $^3\text{He}$  の融解圧力を測って温度を決定する一次温度計で、低温で 3 つの定点、高温から順に液体  $^3\text{He}$  の常流動相-超流動 A 相転移点 (A 点)、超流動 A 相-B 相転移点 (B 点)、固体  $^3\text{He}$  の常磁性相-核磁気秩序相転移点 (S 点) を持ち、圧力定点及び温度定点になる。 $^3\text{He}$  融解圧は、 $0.318\text{ K}$ 、 $2.9316\text{ MPa}$ <sup>12)</sup> で圧力が極小になったあと、温度が下がるにつれて圧力が増加し、S 点では  $0.914\text{ mK}$ 、 $3.4393\text{ MPa}$ <sup>13)</sup> になり、S 点以下の温度では圧力変化は小さくなる。我々は、Fukuyama らの温度スケール<sup>13)</sup> を用いて温度を決定した。我々の圧力計の相対精度は  $\pm 20\text{ Pa}$  であり、この値から  $1\text{ mK}$  での温度の精度は  $\pm 0.007\text{ mK}$ 、 $3\text{ mK}$  で  $\pm 0.005\text{ mK}$  である。

Pt-NMR 温度計で測定した温度範囲は  $38\ \mu\text{K}$  から  $3\text{ mK}$  で、共鳴周波数は  $125\text{ kHz}$ 、パルス幅は  $12^\circ$  と  $30^\circ$  の 2 種類を用いた。 $12^\circ$  パルスで最低温度から  $1\text{ mK}$  まで、 $30^\circ$  パルスで  $50\ \mu\text{K}$  から  $3\text{ mK}$  まで測定できる。高周波パルスによる熱が温度計とセルの間に温度差を生じるので、温度測定は Pt 核の縦緩和時間の 10 倍以上の間隔で行った。例えば、 $40\ \mu\text{K}$  の時 3 時間間隔、 $100\ \mu\text{K}$  の時 1 時間間隔、 $1\text{ mK}$  の時 5 分間隔で測定した。 $30^\circ$  パルスの測定値は  $^3\text{He}$  融解圧温度計で、 $12^\circ$  パルスの測定値は  $30^\circ$  パルスの測定値で較正した。較正式の精度は  $12^\circ$ 、 $30^\circ$  パルスともに  $\pm 0.5\%$  程度。また NMR 温度計の測定値のバラツキは  $\pm 2\%$  以内。 $1\text{ mK}$  以上の温度測定には  $^3\text{He}$  融解圧温度計を使用した。

### 3. 渦電流の計算

交流帯磁率測定に必要な振動磁場はセルに渦電流を生じる。この渦電流を計算し、渦電流による発熱や磁場の減少を調べなければならない。渦電流は、位置  $r$ 、時間  $t$ 、磁場  $H$  とするとき、電信方程式

$$\nabla^2 H(r, t) = \sigma \mu (\partial H / \partial t) + \epsilon \mu (\partial^2 H / \partial t^2) \quad (3.1)$$

で計算することができる。ここで、 $\sigma$ 、 $\mu$ 、 $\epsilon$  はそれぞれ金属の電気伝導率、透磁率、誘電率である。振動磁場が  $H(r) \exp(i\omega t)$  で変化し、 $\omega \ll \sigma / \epsilon$  の時、式 (3.1) は

$$\nabla^2 H(r) = i(2 / \delta^2) H(r) \quad (3.2)$$

と書くことができる。ここで  $\delta$  は振動磁場の表皮深さで  $(2 / \mu \sigma \omega)^{1/2}$  である。この式を用いて内部金属と外部金属の渦電流を計算する。

最初に内部金属の渦電流を計算する。任意の断面を持つ無限長の棒が軸に平行な磁場中に置かれているとき、金属内部の磁場は、軸に垂直方向に  $x y$  座標をとると、

$$\begin{aligned} (\partial^2 H(x, y) / \partial x^2) + (\partial^2 H(x, y) / \partial y^2) \\ = i(2 / \delta^2) H(x, y) \end{aligned} \quad (3.3)$$

と書くことができる。数値計算を行うために、 $x y$  平面に一辺の長さ  $L$  の正方形の枠をとり  $n \times n$  の断片に分ける。この時、点  $(i, j)$  ( $1 \leq i \leq n, 1 \leq j \leq n$ ) の磁場  $H_{i,j}$  は、

$$h^{-2} (H_{i+1,j} + H_{i-1,j} + H_{i,j+1} + H_{i,j-1} - 4 H_{i,j}) = i (2 / \delta^2) H_{i,j} \quad (3.4)$$

と書くことができる。ここで  $h = L / n$ 。金属の外側の磁場が  $H_0$  となる境界条件のもとで、この5点差分近似を  $n \times n$  個の1次方程式として解くことによって、内部磁場  $H_{i,j}$  を求めることができる。また点  $(i, j)$  での電流密度は

$$j_{x i,j} = (H_{i,j+1} - H_{i,j-1}) / (2h) \quad (3.5)$$

$$j_{y i,j} = (H_{i+1,j} - H_{i-1,j}) / (2h) \quad (3.6)$$

で与えられる。

これらの数値計算からセルの内部金属の発熱を求めると、1.6 Hz、130 n T<sub>rms</sub> の振動磁場の時、0.65 pW になる。また試料空間の側面にはスリットがあるので試料空間を一周する電流は流れず、渦電流による磁場の減衰は小さい。

次に外部金属の渦電流を計算する。外半径  $r_0$ 、内半径  $r_1$  の無限長の金属円筒を軸と平行な振動磁場  $H_0$  中に置き、その円筒内部にセルの内部金属と同じ断面を持つ金属があるときに、円筒内部に流れる電流  $j(r)$  ( $r_1 \leq r \leq r_0$ ) は式(3.2)から

$$j(r) = (H_0 / a C) (A J_1(r/a) + B N_1(r/a)) \quad (3.7)$$

と書ける。ここで、

$$A = q N_0(r_1/a) - (2a/r_1) N_1(r_1/a)$$

$$B = -q J_0(r_1/a) + (2a/r_1) J_1(r_1/a)$$

$$C = A J_0(r_0/a) + B N_0(r_0/a)$$

$$a = (1 + i) \delta / 2$$

また、 $J_0$ 、 $J_1$ 、 $J_2$ は0次、1次、2次のベッセル関数、 $N_0$ 、 $N_1$ 、 $N_2$ はノイマン関数、 $q$ は円筒内部に金属がある場合のない場合に対する磁束の比で、式(3.4)の数値計算によって求められる。例えば16 Hzの振動磁場の時、 $q = 0.750 - i0.183$ 。試料空間の磁場 $H_1$ は

$$H_1 = H_0 (i 2 \delta^2 / \pi r_1^2 C) \quad (3.8)$$

によって求められる。

式(3.8)を用いて、2種類の金属について磁場の減衰を計算する。セルに使用した銀銅合金の $\sigma$ は4.2 Kで $2.0 \times 10^8 \Omega^{-1} \text{ m}^{-1}$ あり、 $r_0 = 4.85 \text{ mm}$ 、 $r_1 = 2.5 \text{ mm}$ 、16 Hzの振動磁場の時 $\delta = 8.9 \text{ mm}$ 、 $|H_1| = 0.988 H_0$ になる。一方円筒にRRR = 2000の銀を用いた場合 $\delta = 0.36 \text{ mm}$ 、 $|H_1| = 0.00063 H_0$ となり、外部磁場はほとんど内部に入らない。このように電気伝導率の大きい金属を用いると磁場の減衰が大きいため、外部金属として電気伝導率の小さい銀銅合金を用いた。また16 Hz、130 nT<sub>rms</sub>の振動磁場では、外部金属の発熱は1.23 pWになる。

測定する相互インダクタンス $M$ は、渦電流の影響を受け、試料の交流帯磁率と次式で結ばれる。

$$\chi = M (Q / s) \exp(-i\Phi) \quad (3.9)$$

ここで、 $Q$ はコイルや試料の形状による係数、 $s$ 、 $\Phi$ は振動磁場の周波数の関数で式(3.8)から計算される。例えば振動磁場が16 Hzの時、 $s = 0.988 \pm 0.003$ 、 $\Phi = 5.5^\circ \pm 1.6^\circ$ になる。

#### 4. 感度の計算

測定を行うに当たって静磁化と交流帯磁率の感度を計算する必要がある。試料は焼結された銀微粒子の隙間にあり、しかもコイルの中心軸から1.5 mmはずれた位置にある3本の円柱形をしている。これらの形状から感度を計算するのは困難なので、次の仮定をする。

- 1) 3本の円柱を1本の円柱にまとめる。その円柱の長さは3本の円柱のそれぞれの長さに等しく、断面積は3本の円柱の断面積の和とする。この円柱をコイルの中心軸に置く。
- 2) 銀微粒子の隙間にある試料の平均消磁係数Dを1/3とする。また1)の円柱の消磁係数を0とする。
- 3) 1次コイルが2次コイルの中心につくる磁場は試料に様にかかっていると仮定する。
- 4) 超伝導シールドはその半径に比べて長さが十分長いと仮定する。

図4-1に示すような形状の時、相互インダクタンスMは

$$M = \pi \mu_0 n_p N_s r_s^2 f_p f_{sh} (1 - D + f_s) \eta \chi \quad (4.1)$$

で与えられる。ここで、 $f_p$ 、 $f_s$ 、 $f_{sh}$ は、それぞれ1次コイル、2次コイル、超伝導シールドの形状によって決まる因子で、

$$f_p = \left\{ \frac{(a_2 + d)}{\sqrt{(a_2 + d)^2 + b_p^2}} + \frac{(a_1 + a_2 + 3d)}{\sqrt{(a_1 + a_2 + 3d)^2 + b_p^2}} \right\} / 2$$

$$f_s = \left\{ 2 \left( \sqrt{b_s^2 + (d+l)^2} - \sqrt{b_s^2 + (d-l)^2} \right) \right. \\ \left. + \sqrt{r_s^2 + (d-l)^2} - \sqrt{r_s^2 + (d+l)^2} \right) \\ + \sqrt{b_s^2 + (a_1+d+l)^2} \\ - \sqrt{b_s^2 + (a_1+d-l)^2} \\ + \sqrt{b_s^2 + (a_1+3d-l)^2} \\ - \sqrt{b_s^2 + (a_1+3d+l)^2} \left. \right\} / 4d$$

$$f_{sh} = 1 - (b_p / b_{sh})^2$$

ここで  $\mu_0$  は真空の透磁率、 $n_p$  は 1 次コイルの巻数密度、 $N_s$  は 2 次コイルの片側の巻数、 $\eta$  は円柱内の試料の充足率、 $\chi$  は試料の帯磁率、 $a_1$ 、 $a_2$ 、 $d$ 、 $l$ 、 $b_p$ 、 $b_s$ 、 $b_{sh}$ 、 $r_s$  は図 4-1 に示す。同様にシールドにトラップした磁場  $H$  によって、2 次コイルと鎖交する磁束が SQUID センサーにつくる磁束  $F$  は、

$$F = \pi \mu_0 N_s r_s^2 (1 - D + f_s) \eta \xi \chi H \quad (4.2)$$

と与えられる。ここで  $\xi$  はフラックストランスフォーマーの磁束伝達率で、

$$\xi = m_s / L_f$$

$m_s$  は図 2-2 の値、 $L_f$  はフラックストランスフォーマーの自己インダクタンスで  $4.3 \mu\text{H}$ 。従って  $\xi$  は  $4.7 \times 10^{-3}$ 。

式 (4.1) (4.2) から測定感度を求めることができる。表 II に示した数値と、測定に用いた一定磁場が  $1.9 \text{ mT}$  であることから、

$$M = 7.0 \times 10^4 \chi \quad (\text{pH}) \quad (4.3)$$

$$F = 8.9 \times 10^4 \chi \quad (\phi_0) \quad (4.4)$$

$1.9 \text{ cm}^3/\text{mole}$  の固体  $^3\text{He}$  の帯磁率は核磁気相互作用を無視すると



$\chi = 3.3 \times 10^{-7} / T$ であるから、式(4.3)(4.4)からMとFの変化はそれぞれ  $2.3 \times 10^{-2} / T$  (pH)と  $2.9 \times 10^{-2} / T$  ( $\phi_0$ )である。

次に相互インダクタンスの測定精度を見積もる。測定精度は図2-4のレシオトランスの精度とSQUIDセンサーのノイズに依存している。最初にレシオトランスによる精度を見積もる。セルそのものの磁性の影響を避けるために1次コイルと2次コイルの相互インダクタンスを補償しているが、我々の測定セルでは補償されずに残った値  $M_0$ は39 nHである。使用したレシオトランスの最小目盛りは0.001%、その1/10まで読むとすると、相互インダクタンスの精度  $\Delta M$ は式(2.1)(2.2)から  $2 \times 10^{-9} M_0^{-1/2}$  (H)になる。結局  $M_0 = 39$  nHの時  $\Delta M = 0.4$  pHになる。次にSQUIDセンサーのノイズによる精度を見積もる。相互インダクタンスにあらわれるノイズ  $M_n$ は

$$M_n = (R_M L_f / m_s V) \phi_n \quad (4.5)$$

で与えられる。ここでVはオシレーターの出力電圧、 $\phi_n$ はSQUIDセンサーのノイズ。 $\phi_n$ の値は2章で述べたように  $2.7 \times 10^{-4} \phi_0 / \sqrt{\text{Hz}}$ 、Vは0.35  $V_{\text{rms}}$ でこの値は1次コイルがつくる磁場130 nT  $r_{\text{rms}}$ に相当する。結局  $M_n$ は3.4 pH /  $\sqrt{\text{Hz}}$ になる。ロックインアンプのバンド幅を0.001 Hzにとると、 $\Delta M$ は0.11 pHになる。まとめると、相互インダクタンスの精度はレシオトランスの精度に依存し、0.4 pHになる。

$M_0$ が0でないために、セルの磁化変化が測定にあらわれる。セルの帯磁率  $\chi$ による相互インダクタンス変化は  $\chi M_0$ で与えられる。 $\chi$

... (faint text) ...

をセルに使用した金属の銀と銅の核磁化によるものとする、 $x = (4.3 \times 10^{-8}) / T$ 。  $M_0 = 39 \text{ nH}$ なので、結局相互インダクタンスの温度変化は  $(1.7 \times 10^{-3}) / T$  (pH)。この値は式 (4.3) で計算した試料による相互インダクタンス変化の7%になる。同様に磁束の変化は  $(2.0 \times 10^{-3}) / T$  ( $\phi_0$ ) でこの値も試料による変化の7%になる。

## 5. 測定方法

測定した試料のモル体積は  $18.34$  から  $19.29 \text{ cm}^3/\text{mole}$  の範囲で、試料の  $^4\text{He}$  含有率は  $3 \text{ ppm}$  以下である。配管の中の  $^3\text{He}$  をセルの中の  $^3\text{He}$  より先に固化させることによって、一定体積のもとで試料を固化した。試料の圧力は、2 段目核ステージに取り付けたダイヤフラム型の弾性圧力計で測定した。圧力計を図 5-1 に示す。室温での耐圧は  $21 \text{ MPa}$  以上、精度は  $\pm 1 \text{ kPa}$ 。試料は、融解圧温度より  $50$  から  $80 \text{ mK}$  低い一定温度のもとで、圧力変化が  $2 \text{ kPa/hr}$  以下になるまで (約  $12$  時間)、アニールした。

$19.12$  と  $19.29 \text{ cm}^3/\text{mole}$  の試料は、液体から  $\text{bcc}$  相をへて  $\text{hcp}$  相に入る。これらの試料は、 $\text{bcc}$  相と  $\text{hcp}$  相の両方でアニールした。モル体積は、 $\text{hcp} - \text{bcc}$  あるいは  $\text{hcp} - \text{液体}$  の相転移圧力から決定した。モル体積の誤差は、 $\pm 0.01 \text{ cm}^3/\text{mole}$ 。

我々の測定のポイントは、静磁化と交流帯磁率を同時に測定することにある。SQUID 磁束計は 2 次コイル内の磁束変化を測定するだけなので、静磁化測定は電氣的、機械的擾乱による磁束の跳びの影響を受ける。一方、交流帯磁率は相互インダクタンスそのものを測定することによって得ているので、擾乱前後で再現性がある。我々は擾乱による磁束の跳びを交流帯磁率で補正することによって、安定した静磁化測定を広い温度範囲で行うことができた。

試料は一旦最低温度まで冷却される。その後ヒートパルスによって温度を上げながら測定する。静磁化測定のための静磁場は  $1.9 \text{ mT}$ 。交流帯磁率測定の周波数範囲は  $16$  から  $33 \text{ Hz}$ 、振動磁場は

静磁場と平行で、その大きさは  $130 \text{ n T}_{\text{rms}}$ 。測定は連続的に行われ、ヒートパルス後十分に磁化が緩和するのを待って測定値をとる。温度は離散的に測定され、一つの温度域で10点以上測定する。試料の熱緩和時間はヒートパルス後の時間変化から測定した。緩和時間は  $T^{-3}$  に比例し、例えば  $19.29 \text{ cm}^3/\text{mole}$  の場合、 $60 \mu\text{K}$  で  $2900$  秒、 $100 \mu\text{K}$  で  $620$  秒だった。我々は、少なくとも緩和時間の10倍の時間を待って、磁化の緩和を確認している。 $19.29 \text{ cm}^3/\text{mole}$  の試料の測定期間は、20日だった。

これらの測定値はセルの磁化の影響を受けるので、空のセルの測定値を引くことによって試料の磁化と帯磁率を得ている。空のセルの磁化の温度変化を図5-2に示す。測定は  $46 \mu\text{K}$  から  $20 \text{ mK}$  の温度範囲で行った。セルの磁化は  $1 \text{ mK}$  以下ではキュリー則に従って変化し、キュリー定数は  $1.95 \times 10^{-3} \phi_0 \text{ K}$  だった。この変化は4章での計算結果とよく一致し、セルの銀や銅の核磁化によるものと思われる。 $^3\text{He}$  試料の磁化変化に対するセルの変化は4%程度。さらに、セルの影響を差し引いた測定値に含まれるオフセット  $M_{s0}$  は、 $1 \text{ mK}$  以上の測定値を高温まで外挿することによって決定した。

ヒートパルスを入れていないときの2段階核ステージの温度上昇は  $55 \mu\text{K}$  の時  $62 \text{ nK/hr}$ 。この温度上昇から見積もられる外部から2段階核ステージに入る熱は  $0.7 \text{ nW}$ 。また温度上昇によって試料とセルの間に生じる温度差は  $64 \text{ nK}$ 。交流帯磁率測定のための振動磁場による熱発生の測定値は、 $19 \text{ Hz}$  の時  $3 \text{ pW}$  以下。

## 6. 静磁化の結果と議論

19.29 cm<sup>3</sup>/moleの静磁化と温度の逆数のグラフを図6-1、6-2に示す。磁化は高温では温度の逆数とよく比例しているが、低温になるにつれて磁化は比例直線より大きくなる。これは相互作用が強磁性的になっていることを示している。図6-3に測定した試料の磁化の逆数と温度のグラフを示す。これらの試料はワイス温度が正のキュリー・ワイス則によく従い、測定温度範囲で核磁気相転移は起こらなかった。また19.29 cm<sup>3</sup>/moleは低温でキュリー・ワイス則からはずれてくる。磁化M<sub>s</sub>の高温展開式

$$(M_s/H)^{-1} = C_1^{-1} (T - \theta + B/T + \dots) \quad (6.1)$$

のワイス温度 $\theta$ よりも高次の項が現れてきたためと思われる。ここでHは試料にかかる一定磁場、 $C_1$ はキュリー定数。我々は測定値を式(6.1)にフィットすることによって、 $\theta$ やBを決定した。18.34から19.12 cm<sup>3</sup>/moleの測定値は第2項まで、19.29 cm<sup>3</sup>/moleの測定値は第3項までの式でフィットした。測定値は0.6 mKで数パーセントの山を持つために、全温度範囲にわたってフィットすることはできなかった。 $\theta$ 、Bとあわせてフィットした温度範囲を表IIIに示す。

ワイス温度 $\theta$ のモル体積変化を図6-4に示す。固体<sup>3</sup>Heの核磁気相互作用はモル体積のべき乗によく比例していることが報告されている。<sup>6)</sup> hcp <sup>3</sup>Heの核磁気相互作用が3体交換だけであると仮定すると、有効交換相互作用を $J_{eff}$ とするとき、 $\theta$ は $6 J_{eff}$ となる。 $\theta$ のモル体積変化をこれらの結果と比較するために、 $\theta$ の

モル体積変化

$$\theta = A (V / 19)^\gamma \quad (6.2)$$

を求める。ここでVはモル体積で単位は $\text{cm}^3/\text{mole}$ 。フィットの結果はAと $\gamma$ がそれぞれ $16.3 \pm 0.7 \mu\text{K}$ と $16.1 \pm 2.3$ になる。図6-4を見ると明らかなように、 $19.12 \text{ cm}^3/\text{mole}$ の $\theta$ は他の試料の $\theta$ のモル体積変化に比較すると小さい。この原因は、 $19.12 \text{ cm}^3/\text{mole}$ の測定値をフィットした温度範囲が他のモル体積に比べて狭いこと、また $14\theta$ 以下の温度範囲にかかわらず式(6.1)の第2項までの式でフィットしたことが考えられる。 $19.12 \text{ cm}^3/\text{mole}$ の $\theta$ を除いて再びフィットすることによって、 $A = 17.4 \pm 0.2 \mu\text{K}$ 、 $\gamma = 18.4 \pm 0.6$ と結論した。

$19.12 \text{ cm}^3/\text{mole}$ の正しい $\theta$ を求めるために、式(6.1)の第3項までの式で測定値をフィットすることを試みた。 $19.12 \text{ cm}^3/\text{mole}$ の測定値はよくキュリー・ワイス則に従っているために、 $C_1$ 、 $\theta$ 、 $B$ をフリーパラメーターとして $\theta$ を求めても $B \approx 0$ となり、第2項までの式でフィットした $\theta$ と同じ結果しか得られない。このため後述するような $B$ と $\theta$ の関係から、表IIIに示す $19.29 \text{ cm}^3/\text{mole}$ で得た結果 $B = 0.40 \theta^2$ が $19.12 \text{ cm}^3/\text{mole}$ でも成り立つと仮定し、 $C_1$ 、 $\theta$ をフリーパラメーターとしてフィットすることによって、 $\theta = 18.7 \mu\text{K}$ を得た。この値は $A = 17.4 \mu\text{K}$ 、 $\gamma = 18.4$ の結果によくのっている。

$\text{h c p } ^3\text{He}$ のワイス温度の測定はこれまでに Takanoらの結果<sup>7)</sup>がある。彼らの測定結果を図6-4に示す。我々の $\theta$ の値は彼らの

値の約0.5倍である。また、 $\gamma$ の値も彼らの結果 $\gamma = 11.1 \pm 1.0$ より1.7倍大きい。特に我々の結果と対照的なのは、彼らの $\theta$ の値が小さいモル体積で式(6.2)で示す変化よりゆるやかになることである。

我々の $\theta$ の結果とTakanoらの結果とが異なっている原因はよくわからない。Takanoらの測定の温度範囲は $43 \mu\text{K}$ から $370 \mu\text{K}$ で、測定値を $M_{\text{So}} + C_1 / (T - \theta)$ にフィットして、 $\theta$ を決定している。ここで $M_{\text{So}}$ は測定値に含まれるオフセット。彼らの測定温度は彼らの得たワイス温度 $\theta$ で表わすと $1.3\theta$ から $16\theta$ の範囲で、このような低い温度範囲にもかかわらず、高温展開式の $\theta$ より高次の項を考慮していない。また測定値がキュリー・ワイス則に従うとして $M_{\text{So}}$ を決定しているので、 $M_{\text{So}}$ にも測定値のオフセットだけでなく高次の項の影響も含まれてしまう。このために彼らは $\theta$ の見積りを誤ってしまった可能性がある。Rogerら<sup>14)</sup>は、後で述べるような交換相互作用による磁化の4次までの高温展開式を計算し、その式にTakanoらのデータを再フィットし、 $\theta$ を求めている。その結果は $19.4 \text{ cm}^3/\text{mole}$ の時 $\theta \approx 60 \pm 5 \mu\text{K}$ となり、我々の結果とますます離れてしまう。

有効核磁気相互作用 $J_{eff}$ の測定には、NMRの緩和時間からの結果<sup>6)</sup>がある。その結果は $|J_{eff}| = 4.3 (V/19)^{1/3} \mu\text{K}$ である。我々の $\theta$ のモル体積のべき数 $\gamma = 18.4 \pm 0.6$ とNMRの結果 $\gamma = 19$ はよく一致している。しかし我々の結果 $A/6 = 2.9$ は、NMRの結果4.3と異なる。これは、後で述べるように、hcp  $^3\text{He}$ の核磁性には3体交換相互作用だけではなく、4体交換も重

要なかわりを持っているためと考えられる。

我々が得た  $\theta$  と B から h c p  $^3\text{He}$  の核磁気相互作用を見積もることができる。Rogerら<sup>14)</sup>によれば、4体までの交換相互作用によるハミルトニアン  $\mathcal{H}_{ex}$  は、P をスピンの交換演算子とすると、

$$\mathcal{H}_{ex} = -\tilde{J}_1 \sum_{1 < j}^{(1)} P_{1j} - \tilde{J}_2 \sum_{1 < j}^{(2)} P_{1j} - K \sum_{1 < j < k < l} (P_{1j k l} + P_{1j k l}^{-1}) + \text{const.} \quad (6.3)$$

と与えられる。ここで  $\Sigma^{(1)}$ 、 $\Sigma^{(2)}$  は、それぞれ h c p の基底面内と基底面間の最隣接格子の和である。 $\tilde{J}_1$ 、 $\tilde{J}_2$  は3体交換を含む有効2体交換相互作用で、 $\tilde{J}_1$ 、 $\tilde{J}_2$ 、K はそれぞれ

$$\tilde{J}_1 = J_{NN} - J_T - 2 J_T' \quad (6.4)$$

$$\tilde{J}_2 = J_{NN}' - 4 J_T' \quad (6.5)$$

$$K = K_S' \quad (6.6)$$

で与えられる。図6-5に示すように、 $J_{NN}$ 、 $J_T$  はそれぞれ基底面内の最隣接2体交換と3体交換相互作用で、 $J_{NN}'$ 、 $J_T'$  は基底面間の交換相互作用、また  $K_S'$  は基底面間の4体交換相互作用である。Rogerらは  $J_T^*$  は他の相互作用に比べて小さいので考慮していない。また交換演算子は式(1.3) - (1.6)で与えられる。

分配関数 Z は、 $\text{tr} [\exp(-\beta \mathcal{H}_{ex}) \exp(-\beta \mathcal{H}_z)]$  で与えられる。ここで  $\mathcal{H}_z$  はゼーマンハミルトニアン。Rogerらは自由エネルギー

$$F = -\beta^{-1} \ln Z \quad (6.7)$$

の4次までの高温展開係数を求めた。彼らの結果から  $\theta$  と B は、



$$\theta = 3 \tilde{J}_1 + 3 \tilde{J}_2 + 9 K \quad (6.8)$$

$$B = 3 \tilde{J}_1^2 + 3 \tilde{J}_2^2 + (3/2) (\tilde{J}_1 + \tilde{J}_2) K + (27/4) K^2 \quad (6.9)$$

と与えられる。Rogerの近似計算<sup>8)</sup>によれば $\tilde{J}_1 \approx \tilde{J}_2$ となることから、我々は $\tilde{J}_1 = \tilde{J}_2$ と仮定し、 $19.29 \text{ cm}^3/\text{mole}$ の $\theta$ と $B$ から $\tilde{J}_1$ と $K$ を計算すると、それぞれ $6.1 \pm 0.3 \mu\text{K}$ 、 $-1.5 \pm 0.2 \mu\text{K}$ となる。 $\tilde{J}_1 > 0$ という結果は、 $J_{NN}$ 、 $J_T$ 、 $J_{NN}'$ 、 $J_T'$ 、 $K_s'$ がすべて負であることを留意すれば、式(6.4)(6.5)から2体交換相互作用より3体交換相互作用が大きいことを示している。また我々の得た $K = -0.25 \tilde{J}_1$ という結果は、4体交換相互作用が3体交換と同様hcp  $^3\text{He}$ の核磁性に重要であることを示している。これは、理論的予想<sup>9)</sup>に対応する最初の実験結果である。

この結果は、hcp  $^3\text{He}$ の核磁気秩序状態のスピンの配列を考える上で、重要な情報を与える。特に式(1.6)に着目すると、 $G_{1jk_1}$ の項が最小になるスピンの配列は、例えば1つが下向きに他の3つが上向きになる配列等がある。このことは、核磁気秩序相では単に強磁性的にスピンの配列するのではなく、もっと複雑なスピンの配列をとる可能性があることを示唆している。<sup>15)</sup>

Rogerら<sup>14)</sup>は、 $K = -0.2 \tilde{J}_1$ の時、核磁気相転移温度 $T_c$ を $0.5 \theta$ と見積もっている。この結果を用いると、 $19.29 \text{ cm}^3/\text{mole}$ のhcp  $^3\text{He}$ の $T_c$ は $12 \mu\text{K}$ と予想される。

Ceperleyは、hcp  $^3\text{He}$ の交換相互作用を、軌道座標の波動関数の固有エネルギーから、モンテカルロ法によって数値計算を行った。<sup>16)</sup> モル体積 $19.4 \text{ cm}^3/\text{mole}$ の計算結果は、 $J_{NN} = -2.4 \mu\text{K}$ 、

(1)  $J_{NN}' = -3.3 \mu K$ ,  $J_T = -4.8 \mu K$ ,  $J_T' = -2.4 \mu K$ ,  
 $J_T^* = -0.5 \mu K$ ,  $K_S' = -1.4 \mu K$ . またこの結果から  $\theta =$   
 $26.9 \mu K$  を得ている。このワイス温度は我々の測定結果とよく一  
 致している。また  $J_1$ ,  $J_2$ ,  $K$  はそれぞれ  $7.7 \mu K$ ,  $6.3 \mu K$ ,  
 $-1.4 \mu K$  となり、我々の結果とよく一致している。

$J_{NN}' = -3.3 \mu K$ ,  $J_T = -4.8 \mu K$ ,  $J_T' = -2.4 \mu K$ ,  
 $J_T^* = -0.5 \mu K$ ,  $K_S' = -1.4 \mu K$ . またこの結果から  $\theta =$   
 $26.9 \mu K$  を得ている。このワイス温度は我々の測定結果とよく一  
 致している。また  $J_1$ ,  $J_2$ ,  $K$  はそれぞれ  $7.7 \mu K$ ,  $6.3 \mu K$ ,  
 $-1.4 \mu K$  となり、我々の結果とよく一致している。

## 7. 交流帯磁率の結果と議論

1.9 m T 磁場中の交流帯磁率  $\chi = \chi' - i \chi''$  の周波数変化を図 7-1 に示す。 $\chi'$  は周波数が増えるにつれて減少し、 $\chi''$  は逆に周波数が増えるにつれて増加する。この結果は、Casimir-Du Pre の熱力学的理論<sup>17)</sup> によって説明できる。

彼らは、一定磁場に平行な振動磁場によって測定される常磁性物質の交流帯磁率を、次のような仮定のもとで求めている。<sup>18)</sup> (図 7-2 参照)

- 1) スピン系および格子はいつもそれぞれ内部的な熱平衡を保ち、それぞれにスピン温度、格子温度という概念を適用することができる。
- 2) スピン系と格子との間には両者の温度差に比例する速さで熱交換が行われる。
- 3) 格子の熱容量はスピン系のそれに比べて大きい。

これらの仮定のもとで熱力学的な考察から  $\chi'$  と  $\chi''$  は

$$\chi' = \chi_s + (\chi_T - \chi_s) / (1 + \omega^2 \tau_{SL}^2) \quad (7.1)$$

$$\chi'' = (\chi_T - \chi_s) \omega \tau_{SL} / (1 + \omega^2 \tau_{SL}^2) \quad (7.2)$$

で与えられる。ここで、 $\omega$  は振動磁場の角周波数、 $\tau_{SL}$  はスピン-格子緩和時間、 $\chi_T$  は等温帯磁率、 $\chi_s$  はスピン-スピン相互作用による断熱帯磁率である。またここで

$$\chi_s = (C_M / C_H) \chi_T \quad (7.3)$$

$C_H$  は磁場一定の比熱、 $C_M$  は磁化一定の比熱。 $C_M$  は  $M$  を磁化とすると、

$$C_M = C_H - (T / \chi_T) (\partial M / \partial T)_H^2 \quad (7.4)$$

である。

スピンスピン緩和時間を  $\tau_s$  とすると、 $\tau_s \ll \tau_{SL}$  の時、 $\tau_s^{-1}$  の近傍の周波数では、式 (7.1) (7.2) と同様の考察から、

$$\chi' = \chi_s / (1 + \omega^2 \tau_s^2) \quad (7.5)$$

$$\chi'' = \chi_s \omega \tau_s / (1 + \omega^2 \tau_s^2) \quad (7.6)$$

と与えられる。周波数が  $\tau_s^{-1}$  より十分大きくなるとゼーマン系内部のエネルギー交換が追いつかず、従ってスピン系の分布関数は変化せず、トータルの磁化も変化しない。故に  $\omega \tau_s \gg 1$  では帯磁率は 0 となる。結局  $\chi'$ 、 $\chi''$  の周波数変化を模式的にあらわせば、図 7-3 になる。

これらの結果は、熱交換のある 2 つの系の帯磁率の周波数変化に応用できる。固体  $^3\text{He}$  の NMR による緩和過程の研究<sup>6)</sup> によれば、超低温では、振動磁場によって生成されるエネルギーは、ゼーマン系から交換系へ、さらにセルへと流れる (図 7-2)。従って緩和時間としては、ゼーマン系内部のスピンスピン緩和時間  $\tau_s$ 、ゼーマン-交換緩和時間  $\tau$ 、セルと試料の境界熱抵抗による緩和時間  $\tau_b$  が考えられる。 $\tau_b$  は静磁化の熱緩和時間の測定から数百秒である。さらにスピンスピン緩和、ゼーマン-交換緩和は核磁気双極子相互作用によって緩和するので<sup>19)</sup> ラーモア周波数が交換周波数に比べて十分小さい磁場中では、 $\tau$  と  $\tau_s$  は等しく、その大きさは数 msec から数百 msec である。我々の測定磁場 1.9 mT では、ラーモア周波数は交換周波数の 0.1 倍程度で十分小さい。従って、

$\tau_b^{-1}$ の周波数の近傍での交流帯磁率は、交換相互作用による断熱帯磁率を $\chi_0$ と置くと、

$$\chi' = \chi_0 + (\chi_T - \chi_0) / (1 + \omega^2 \tau_b^2) \quad (7.7)$$

$$\chi'' = (\chi_T - \chi_0) \omega \tau_b / (1 + \omega^2 \tau_b^2) \quad (7.8)$$

で与えられる。また $\tau^{-1}$ 近傍の交流帯磁率は、

$$\chi' = \chi_0 / (1 + \omega^2 \tau^2) \quad (7.9)$$

$$\chi'' = \chi_0 \omega \tau / (1 + \omega^2 \tau^2) \quad (7.10)$$

で与えられる。 $\chi'$ 、 $\chi''$ の周波数変化を模式的にあらわせば、図7-4になる。

図7-1の測定周波数は $\tau^{-1}$ の近傍なので、測定値を式(7.9)(7.10)に最小自乗フィットすることで、ゼーマン-交換緩和時間を求めることができる。18.34 cm<sup>3</sup>/moleのゼーマン-交換緩和時間は、56.5  $\mu$ Kの時1.28 msec、87.1  $\mu$ Kの時1.30 msec、130  $\mu$ Kの時1.31 msecとなる。緩和時間の誤差は式(3.9)の $\Phi$ の誤差から $\pm 0.3$  msec。 $\chi''$ による熱吸収は50  $\mu$ Kの時0.3 fWと見積もられる。この吸収は試料とセルの間に4 nKの温度差を生じる。

ゼーマン-交換緩和時間は、一定の周波数で測定した交流帯磁率からも得ることができる。19.29 cm<sup>3</sup>/moleの19 Hzで測定した $\chi'$ と $\chi''$ のグラフを図7-5に示す。 $\chi'$ と $\chi''$ は高温では比例している。これは式(7.9)(7.10)から緩和時間が温度によらず一定であることを示している。低温では $\chi'$ と $\chi''$ は比例せず、 $\chi''$ は $\chi'$ より大きく変化している。これは低温で緩和時間が大きくなる傾向を示している。

19 Hzの交流帯磁率から得られたゼーマン-交換緩和時間の温度変化を図7-6に示す。これまでに行われたhcp  $^3\text{He}$ の緩和時間の測定は、ラーモア周波数が交換周波数に比べて十分大きい高磁場中でのNMRによるものがある。<sup>6)</sup> これらの緩和時間と低磁場中で測定した我々の緩和時間を直接比較することはできない。しかし緩和時間が温度によらず一定である結果は、NMRの測定結果と一致する。また我々の緩和時間から有効交換周波数を求めることによって、NMRの結果と比較することができる。Abragam-Goldman<sup>19)</sup>によれば、低磁場中でのhcp  $^3\text{He}$ の緩和時間 $\tau$ によって有効交換周波数 $J_{\text{eff}}$ は、

$$|J_{\text{eff}}| = 4.19 (\gamma^2 \hbar / a^3)^2 \tau \quad (7.11)$$

と与えられる。ここで $\gamma$ は $^3\text{He}$ 核の磁気回転比、 $a$ は最隣接原子間距離、 $\tau$ はゼーマン-交換緩和時間。得られた有効交換周波数をNMRの結果とともに図7-7に示す。我々の測定値は、NMRの結果とよく一致している。 $|J_{\text{eff}}|$ のモル体積変化は、NMRの結果と比べて小さい。これは式(3.9)の $\Phi$ が正確には見積もれていないことからくる誤差の為と思われる。また $18.34 \text{ cm}^3/\text{mole}$ の $|J_{\text{eff}}|$ は $18.57 \text{ cm}^3/\text{mole}$ の $|J_{\text{eff}}|$ に比べて大きい。この原因はわからない。

$19.29 \text{ cm}^3/\text{mole}$ のゼーマン-交換緩和時間は、低温において温度が下がるにつれて増加する。この振る舞いは核磁気相転移近傍で起こる臨界現象だと考えられる。bcc  $^3\text{He}$ ではこの様な相転移近傍での緩和時間の変化は報告されておらず、この現象の観測は固体 $^3\text{He}$ では初めてである。

式(7.9)(7.10)から $x_0$ を求めることができる。 $x_0$ と静磁化 $M_s$ のグラフを図7-8に示す。 $x_0$ と $M_s$ は高温では比例しているが、低温では $x_0$ は $M_s$ より変化が小さくなる。 $x_0$ は式(7.3)(7.4)から、

$$x_0 = [1 - (T/\chi_T C_H) (\partial M/\partial T)_H^2] \chi_T \quad (7.12)$$

で与えられる。 $C_H$ 、 $\chi_T$ を高温展開式の第1項までとると、

$$C_H \approx (b + C_1 H^2) / T^2 \quad (7.13)$$

$$\chi_T \approx C_1 / (T - \theta) \quad (7.14)$$

と与えられる。ここで $b$ は交換相互作用による比熱の第1項の係数、 $C_1$ はキュリー一定数、 $H$ は試料にかかっている磁場。従って式(7.12)は、

$$x_0 \approx [1 - (C_1 H^2 / (b + C_1 H^2)) (T / (T - \theta))^3] \chi_T \quad (7.15)$$

となる。これまでに $H=0$ でのh c p  $^3\text{He}$ の比熱測定はなく、 $b$ の実験値を与えることはできない。従って $b$ を求めるために、式(6.7)の自由エネルギーの高温展開式の結果を用いる。

$b$ は、

$$b = (R/4v) (9 \check{J}_1^2 + 9 \check{J}_2^2 + 18 \check{J}_1 K + 18 \check{J}_2 K + (171/4) K^2) \quad (7.16)$$

と与えられる。ここで $R$ は気体定数、 $v$ は1モルあたりの体積。この式と我々の求めた $19.29 \text{ cm}^3/\text{mole}$ の結果 $\check{J}_1 (= \check{J}_2) = 6.1 \mu\text{K}$ 、 $K = -1.5 \mu\text{K}$ を用いると、

$$b \approx 109 (R/v) \quad (\times 10^{-12} \text{ J K}) \quad (7.17)$$

また  $C_1 H^2$  は  $H = 1.9 \text{ m T}$  より

$$C_1 H^2 \approx 2.2 (R/v) \quad (\times 10^{-12} \text{ J K}) \quad (7.18)$$

比例定数を  $c$  と置くと、 $x_T = c M_s$  なので、結局

$$x_0 \approx [1 - (1/51) (T/(T-\theta))^3] c M_s \quad (7.19)$$

となる。

式(7.19)によれば、 $T \gg \theta$  の温度では  $x_0$  と  $M_s$  は比例するが、温度が下がるにつれて  $x_0$  の変化は  $M_s$  よりも小さくなる。例えば高温の時  $x_0 = 0.98 c M_s$  に対して、 $T = 50 \mu \text{ K}$  の時、 $\theta = 23 \mu \text{ K}$  であるので、 $x_0 = 0.88 c M_s$  となる。この結果は  $M_s - x_0$  の測定結果とよく一致している。



## 8. まとめ

我々はh c p 固体  $^3\text{He}$  の静磁化と交流帯磁率を  $38\ \mu\text{K}$  から  $6\ \text{mK}$  の温度範囲で測定した。

静磁化の測定から、モル体積  $18.34$  から  $19.29\ \text{cm}^3/\text{mole}$  の範囲でワイス温度  $\theta$  を求めた。ワイス温度は正で強磁性的振る舞いをしていいる。ワイス温度のモル体積変化  $\theta = A (V/19)^\gamma$  は、 $A = 17.4 \pm 0.2\ \mu\text{K}$ 、 $\gamma = 18.4 \pm 0.6$  の結果を得た。この結果は、これまでに測定されたTakanoらのワイス温度の結果<sup>7)</sup> とは、 $A$ 、 $\gamma$  とともに異なっている。しかしNMRによる緩和時間から得た有効交換相互作用のモル体積変化  $\gamma = 19$  と<sup>6)</sup> 我々の結果とはよく一致している。

$19.29\ \text{cm}^3/\text{mole}$  の試料については、 $\theta$  の他に磁化の高温展開式の  $\theta$  の次の項の係数  $B$  も求めた。 $\theta$  と  $B$  の値から、Rogerらの高温展開式の計算結果<sup>14)</sup> を用いて、 $\tilde{J}_1 (= \tilde{J}_2) = 6.1 \pm 0.3\ \mu\text{K}$ 、 $K = -1.5 \pm 0.2\ \mu\text{K}$  を得た。ここで、 $\tilde{J}_1$ 、 $\tilde{J}_2$  は3体交換を含む有効2体交換相互作用、 $K$  は4体交換相互作用。 $\theta$  が正であることから、3体交換相互作用がh c p  $^3\text{He}$  の核磁性に支配的である。しかし  $K = -0.25\ \tilde{J}_1$  という結果は、4体交換相互作用が3体交換と同様h c p  $^3\text{He}$  の核磁性に重要であることを示している。

交流帯磁率測定から、超低温度、低磁場でのゼーマン-交換緩和時間を得た。緩和時間は温度によらず一定で、この結果は  $1\ \text{K}$  前後での高温、高磁場でのNMRによる測定結果<sup>6)</sup> と一致している。また緩和時間から求めた有効交換相互作用はNMRの結果とよく一致

している。

$19.29 \text{ cm}^3/\text{mole}$ の緩和時間は低温で温度が下がるにつれて増加する現象を観測した。この現象は核磁気相転移温度近傍で起こる臨界現象だと考えられる。この現象はこれまでに報告されておらず、固体  $^3\text{He}$  では初めての観測である。

これらの h c p  $^3\text{He}$  の核磁性の測定結果は、核磁気秩序相について重要な情報を与える。3体交換相互作用に加えて4体交換相互作用の存在が明らかになり、この結果は、h c p  $^3\text{He}$  の核磁気秩序構造は単なる強磁性的スピン配列をとるのではなく、もっと複雑なスピン配列をとる可能性を示唆している。また核磁気相転移近傍の緩和時間は、核磁性の臨界現象を研究する上で、重要な試金石になる。これらの核磁性を明らかにするためには、h c p  $^3\text{He}$  を核磁気相転移温度以下まで冷却し、その物性を測定する必要がある。

## 謝辞

この研究は1986年から1990年まで名古屋大学理学部物理学超低温物理研究室で行われました。

この期間、数々の助言、討論、研究のサポートをくださった、馬宮孝好教授に深く感謝します。また理論的サポートやデータ解析への助言をくださった岩橋克聡先生に深く感謝します。実験装置の開発、研究に、助言やサポートをくださった井上晶次氏に深く感謝します。また研究のサポートをお願いした三浦裕一先生に感謝します。

装置開発、研究のサポート、データ解析等をともに行ってきた、内山匡氏、南出宜徳氏、加藤崇行氏、近藤浩樹氏、鈴木孝尚氏に深く感謝します。研究期間中、数々の討論をともに行ってきた、阿部聡氏、服部和彦氏、松嶋直樹氏、竹内嗣人氏に感謝します。

最後に、液体ヘリウムの供給や低温装置開発への助言をくださった極低温実験室の方々、柴山日出男氏、伊東竟氏、黒川俊和氏に深く感謝します。

参考文献

- 1) この相互作用には磁気双極子相互作用がある。この大きさは温度に換算して  $100 \text{ nK}$  以下で、交換相互作用が数  $\mu\text{K}$  から数百  $\mu\text{K}$  と比較して十分小さい。
- 2) D.J. Thouless, Proc. Phys. Soc. 86, 893 (1965).
- 3) 例えば次の review を見よ。  
M. Cross, Proc. 18th Int. Conf. on Low Temperature Physics, Kyoto, 1987,  
Jpn. J. Appl. Phys. 26 (1987) Suppl. 26-3, p1855.
- 4) M. Roger, J.H. Hetherington, and J.M. Delrieu,  
Rev. Mod. Phys. 55, 1 (1983).
- 5) D.M. Ceperley and G. Jacucci,  
Phys. Rev. Lett. 58, 1648 (1987).
- 6) R.A. Guyer, R.C. Richardson, and L.I. Zane,  
Rev. Mod. Phys. 43, 532 (1971).
- 7) Y. Takano, N. Nishida, Y. Miura, H. Fukuyama,  
H. Ishimoto, S. Ogawa, T. Hata, and T. Shigi,  
Phys. Rev. Lett. 55, 1490 (1985).
- 8) M. Roger, Phys. Rev. B 30, 6432 (1984).
- 9) T. Mamiya, H. Yano, T. Uchiyama, S. Inoue, and Y. Miura,  
Rev. Sci. Instrum. 59, 1428 (1988), and  
T. Okamoto, H. Fukuyama, H. Ishimoto, and S. Ogawa,  
Rev. Sci. Instrum. 61, 1332 (1990).

- 10) T.W. Bradshaw and W.P. Pratt, Jr.,  
Cryogenics 19, 553 (1979).
- 11) A. Sawada, H. Yano, and Y. Masuda,  
Rev. Sci. Instrum. 56, 480 (1985).
- 12) D.S. Greywall and P.A. Busch,  
J. Low Temp. Phys. 46, 451 (1982).
- 13) H. Fukuyama, H. Ishimoto, T. Tazaki, and S. Ogawa,  
Phys. Rev. B 36, 8921 (1987).
- 14) M. Roger, E. Suaudeau, and M.E.R. Bernier,  
Phys. Rev. B 35, 2091 (1987).
- 15) T. Izuyama (private communication).
- 16) D.M. Ceperley, at the Symposium on Quantum Fluids and  
Solids - 1989, University of Florida, Gainesville,  
Florida, 1989 (unpublished).
- 17) H.B.G. Casimir and F.K. Du Pre, Physica 5, 507 (1938).
- 18) 永宮健夫、久保亮五編：固体物理学第2版（岩波書店、1966）。
- 19) A. Abragam and M. Goldman, Nuclear magnetism: order and  
disorder (Clarendon, Oxford, 1982).

表

表 I. SQUID の rf ケーブルとして使用した延長ケーブル。

ケーブル	内部導体	外部導体	インピーダンス $\Omega$	外径 mm	長さ m	位置
0.8D-QEV	銅線	銅網	50	2.2	1.8	低温層内
特注	銅線	Cu-Ni チューブ	50	1.2	1.2	低温層と 外部の間
3C2V	銅線	銅網	75	5.8	2.2	低温層外

表 II. 帯磁率の感度を見積もるためのパラメーター。

パラメーター	値
$l$	5.0 mm
$r_s$	1.7 mm
$a_1$	13.0 mm
$a_2$	4.0 mm
$d$	1.0 mm
$b_p$	4.9 mm
$b_s$	5.1 mm
$b_{sh}$	6.5 mm
$n_p$	7320 turns/m
$N_s$	12 turns
$\gamma$	0.48

試料	モル体積	測定温度	測定方法	測定装置	測定条件
内蔵標準試料	18.34	45 - 340	静磁化	静磁化装置	真空
外部標準試料	18.57	64 - 400	静磁化	静磁化装置	真空
外部標準試料	18.80	71 - 310	静磁化	静磁化装置	真空
外部標準試料	19.12	70 - 230	静磁化	静磁化装置	真空
外部標準試料	19.29	38 - 240	静磁化	静磁化装置	真空

試料	モル体積	測定温度	測定方法	測定装置	測定条件
内蔵標準試料	18.34	45 - 340	静磁化	静磁化装置	真空
外部標準試料	18.57	64 - 400	静磁化	静磁化装置	真空
外部標準試料	18.80	71 - 310	静磁化	静磁化装置	真空
外部標準試料	19.12	70 - 230	静磁化	静磁化装置	真空
外部標準試料	19.29	38 - 240	静磁化	静磁化装置	真空

表 III. 静磁化測定から得た各モル体積の  $\theta$  と B の値。

モル体積 cm <sup>3</sup> /mole	フィットの 温度範囲 μ K	$\theta$ μ K	B μ K <sup>2</sup>
18.34	45 - 340	9.0 ± 0.2	
18.57	64 - 400	11.7 ± 0.3	
18.80	71 - 310	14.2 ± 0.2	
19.12	70 - 230	16.2 ± 0.4	
19.29	38 - 240	23.0 ± 0.6	211 ± 20

試料	圧力	温度	測定時間
1	1.0 MPa	4.2 K	10分
2	1.0 MPa	4.2 K	10分
3	1.0 MPa	4.2 K	10分
4	1.0 MPa	4.2 K	10分
5	1.0 MPa	4.2 K	10分

図説

- 1 - 1 b c c  $^3\text{He}$  の多体交換。
- 2 - 1 クライオスタット ( 2 段核断熱消磁冷凍機と実験空間 ) 。
- 2 - 2 実験空間の拡大図。
- 2 - 3 2 段核断熱消磁冷凍機の冷却例。2 つの核ステージの磁場を励磁した時を 0 とした。実線は 2 段目核ステージの温度、点線は 1 段目核ステージの温度。A : 希釈冷凍機で核ステージを冷却。B : 1 段目核ステージを消磁し 2 段目核ステージを冷却。C : 1 段目と 2 段目を切り離し、1 段目核ステージを励磁後、希釈冷凍機で 1 段目核ステージを冷却。D : 1 段目核ステージを消磁し 2 段目核ステージを再び冷却。E : 2 段目核ステージを消磁。F : 最低温度、消磁後半日の時間を置いて測定を開始する。
- 2 - 4 静磁化および交流帯磁率測定回路。点線内はクライオスタット内部。
- 2 - 5 固体  $^3\text{He}$  の静磁化および交流帯磁率測定セル。
- 2 - 6  $^3\text{He}$  融解圧温度計。ダイヤフラム型の弾性圧力計で、圧力の変化を電気容量の変化として測定する。
- 4 - 1 測定感度を計算するための、試料、コイル、シールドの図。各パラメーターは表 II に示す。
- 5 - 1 ダイヤフラム型の弾性圧力計。試料作成時の圧力のモニターに使用する。圧力の変化を電気容量の変化として測定する。室温での耐圧は 21 MPa 以上、精度は  $\pm 1 \text{ kPa}$  。



- 5 - 2 空のセルの磁化変化。横軸は温度の逆数。
- 6 - 1  $19.29 \text{ cm}^3/\text{mole}$ の静磁化変化。横軸は温度の逆数。
- 6 - 2 図6-1の高温部分の拡大図。
- 6 - 3 hcp  $^3\text{He}$ の静磁化の逆数の温度変化。実線は式(6.1)のフィット曲線。 $19.29 \text{ cm}^3/\text{mole}$ は式(6.1)の第3項まで、その他の試料は第2項までの式でフィットした。
- 6 - 4 hcp  $^3\text{He}$ のワイス温度のモル体積変化。○は我々の測定結果。□はTakanoらの結果。<sup>7)</sup> 我々のワイス温度の誤差は0.2から0.6  $\mu\text{K}$ 。実線は $V^{18.4}$ のフィット曲線。
- 6 - 5 hcp  $^3\text{He}$ の多体交換。
- 7 - 1  $18.34 \text{ cm}^3/\text{mole}$ の交流帯磁率 $\chi = \chi' - i\chi''$ 。横軸は周波数。○は56.5  $\mu\text{K}$ 、△は87.1  $\mu\text{K}$ 、□は130  $\mu\text{K}$ で測定した。実線は式(7.9)(7.10)のフィット曲線。
- 7 - 2 常磁性塩と固体 $^3\text{He}$ の緩和モデル。常磁性塩はスピン系内部のスピン-スピン緩和時間 $\tau_s$ とスピン-格子緩和時間 $\tau_{sl}$ がある。固体 $^3\text{He}$ はゼーマン系内部のスピン-スピン緩和時間 $\tau_s$ 、ゼーマン-交換緩和時間 $\tau$ 、交換-セル緩和時間 $\tau_b$ がある。
- 7 - 3 常磁性物質の $\chi'$ と $\chi''$ の周波数変化の模式図。
- 7 - 4 低磁場中の固体 $^3\text{He}$ の $\chi'$ と $\chi''$ の周波数変化の模式図。
- 7 - 5  $19.29 \text{ cm}^3/\text{mole}$ の $\chi'$ と $\chi''$ 。測定周波数は19 Hz。上の横軸に測定温度を示す。

7-6 hcp  $^3\text{He}$  のゼーマン-交換緩和時間の温度変化。測定周波数は 19 Hz。○は  $18.34 \text{ cm}^3/\text{mole}$ 、点はその他のモル体積。  $18.34 \text{ cm}^3/\text{mole}$  の測定値数点は、見やすくするために省いている。  
 7-7 hcp  $^3\text{He}$  の緩和時間から得た有効交換周波数のモル体積変化。NMRの結果は参考文献6。  
 7-8  $19.29 \text{ cm}^3/\text{mole}$  の静磁化  $M_s$  と断熱帯磁率  $\chi_0$ 。  $\chi_0$  は式 (7.9) (7.10) から得た値。上の横軸に測定温度を示す。

7-6 hcp  $^3\text{He}$  のゼーマン-交換緩和時間の温度変化。測定周波数は 19 Hz。○は  $18.34 \text{ cm}^3/\text{mole}$ 、点はその他のモル体積。  $18.34 \text{ cm}^3/\text{mole}$  の測定値数点は、見やすくするために省いている。  
 7-7 hcp  $^3\text{He}$  の緩和時間から得た有効交換周波数のモル体積変化。NMRの結果は参考文献6。  
 7-8  $19.29 \text{ cm}^3/\text{mole}$  の静磁化  $M_s$  と断熱帯磁率  $\chi_0$ 。  $\chi_0$  は式 (7.9) (7.10) から得た値。上の横軸に測定温度を示す。



Fig. 1-1

Faint, illegible text on the left page, possibly bleed-through from the reverse side.

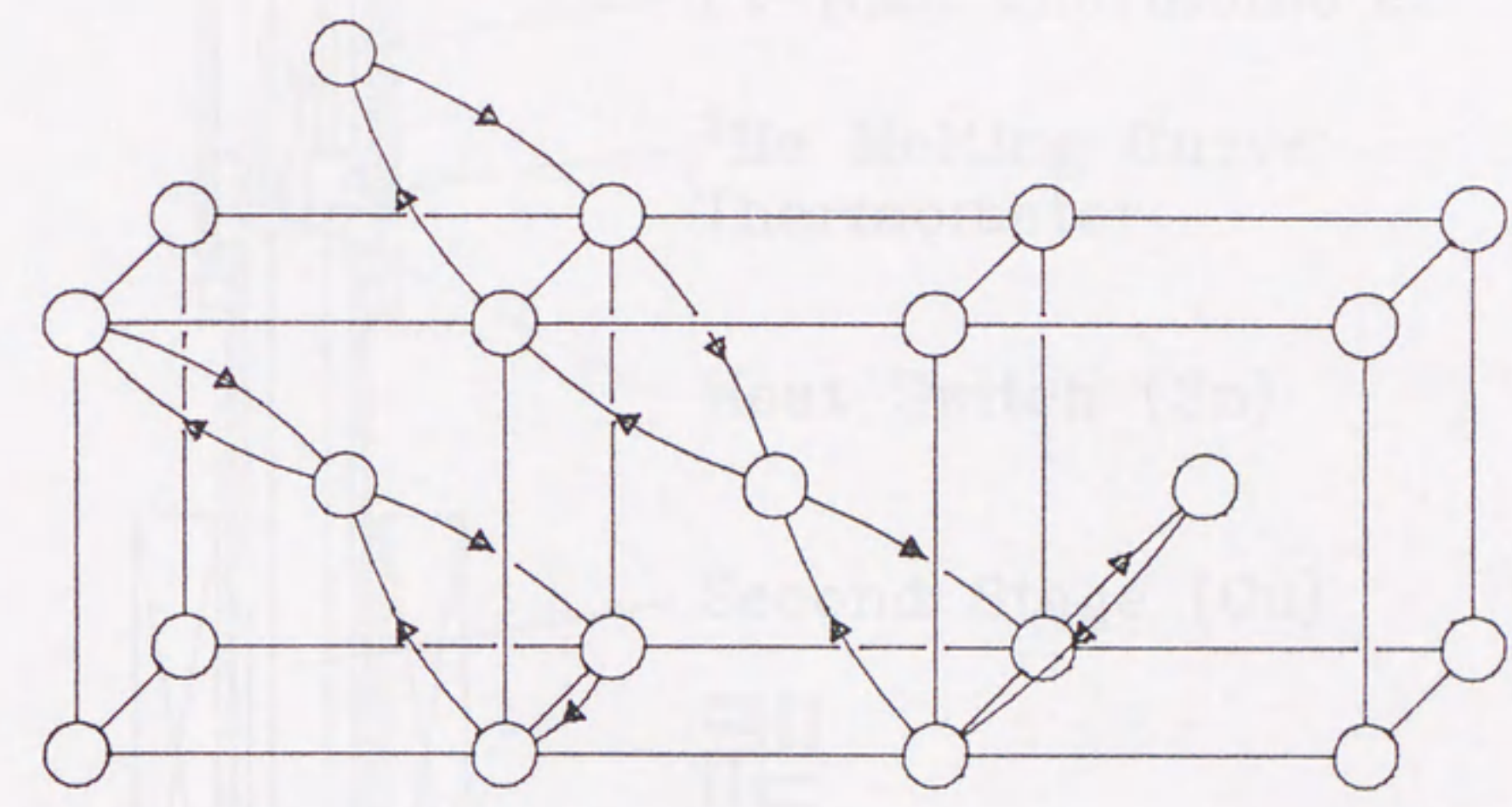


Fig. 1-1

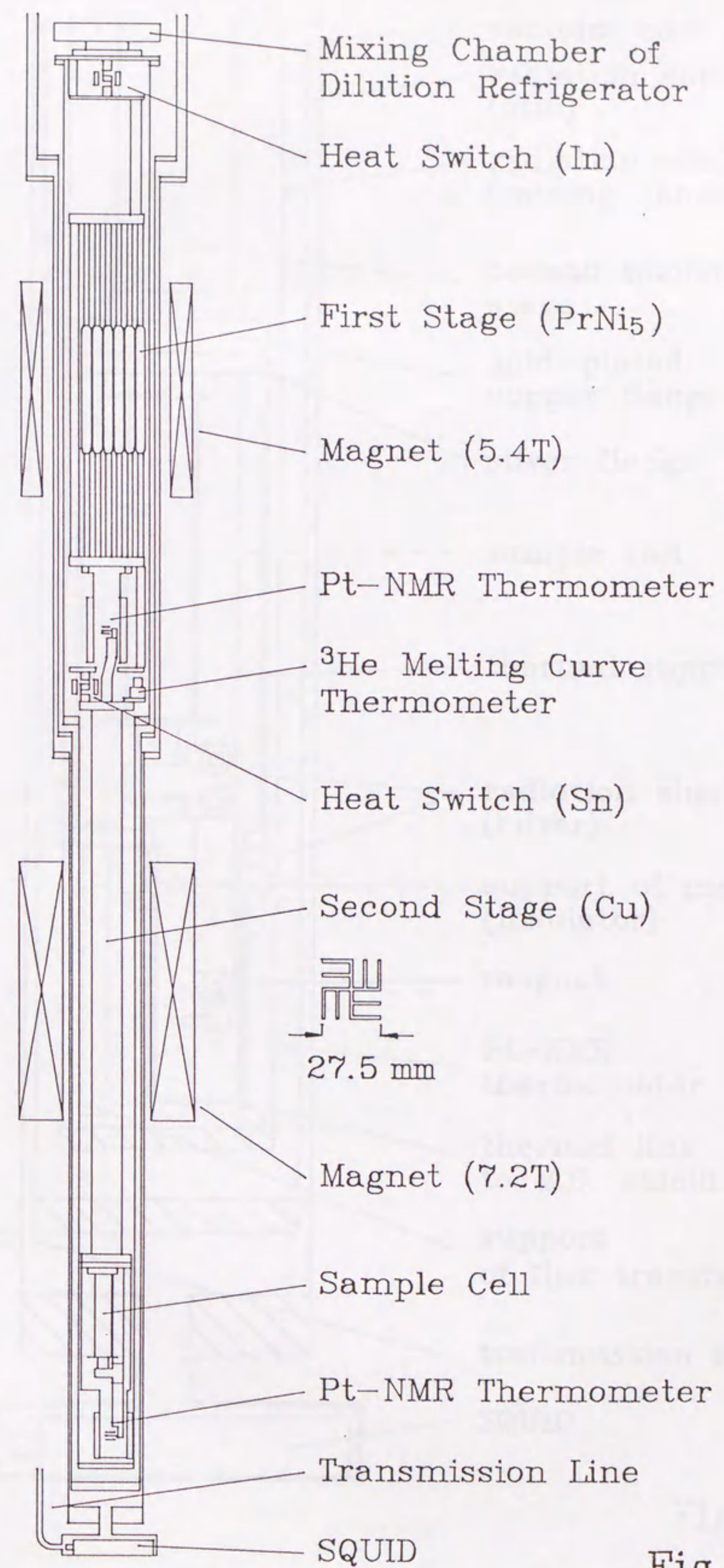


Fig. 2-1

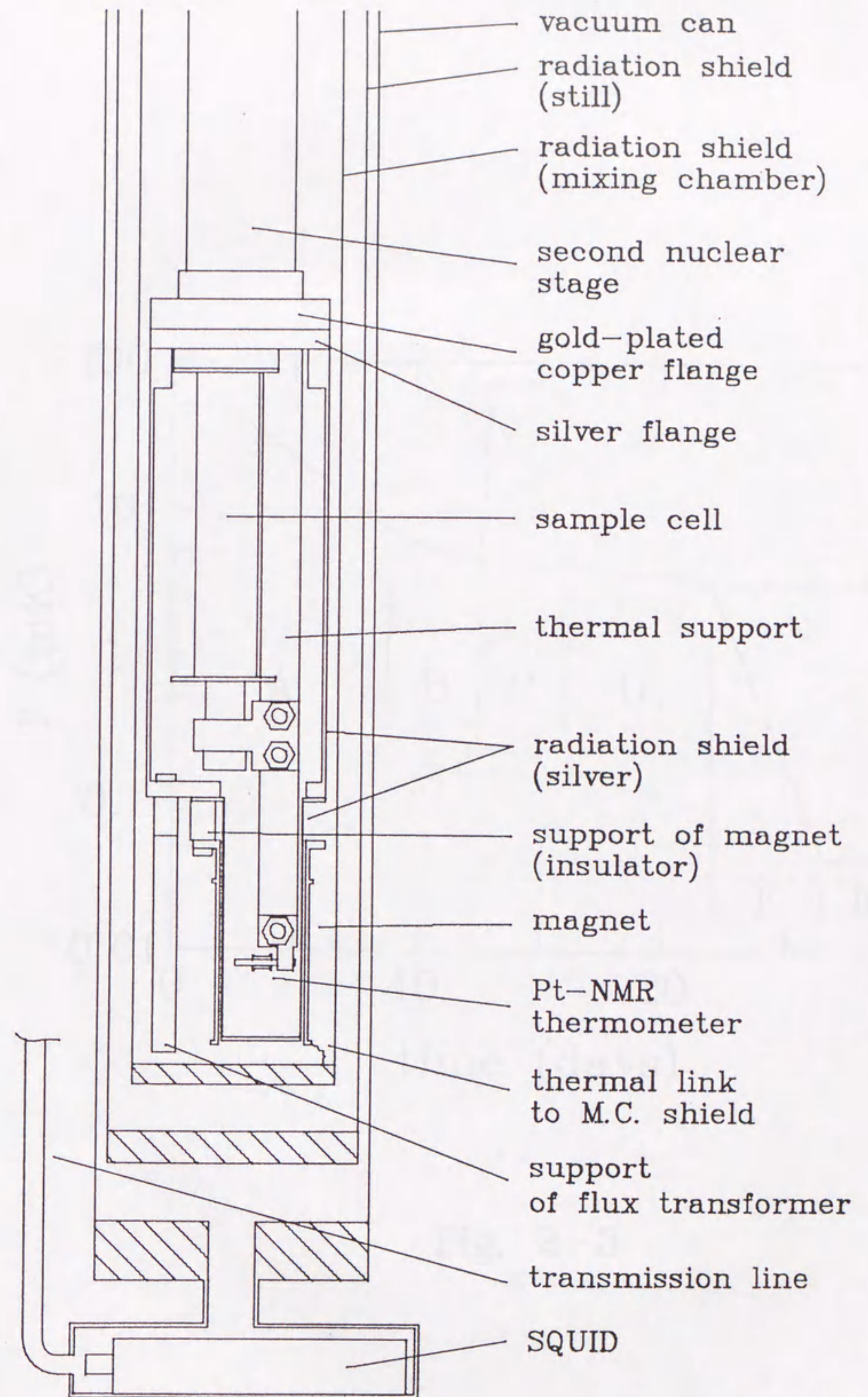


Fig. 2-2

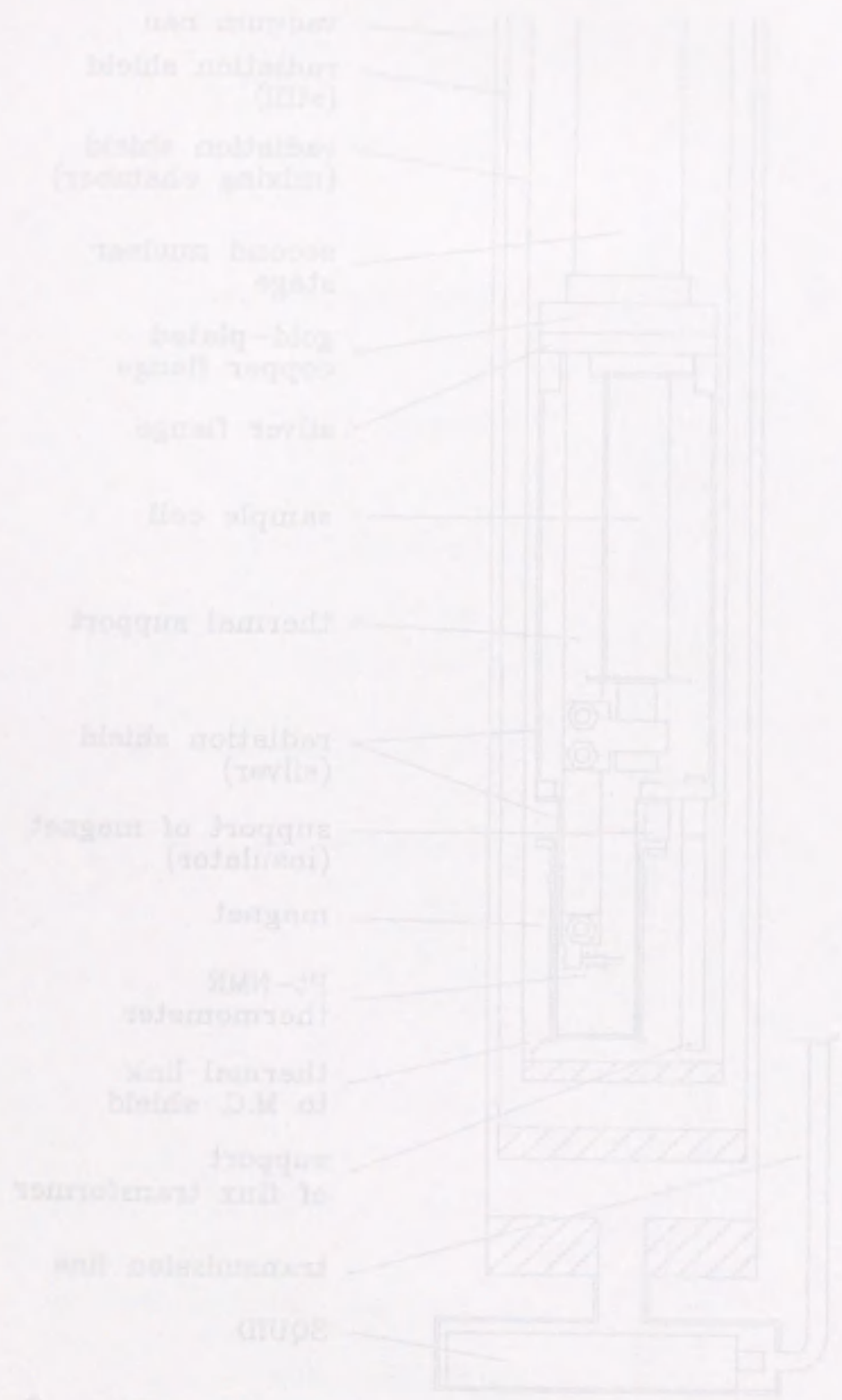


Fig. 2-2

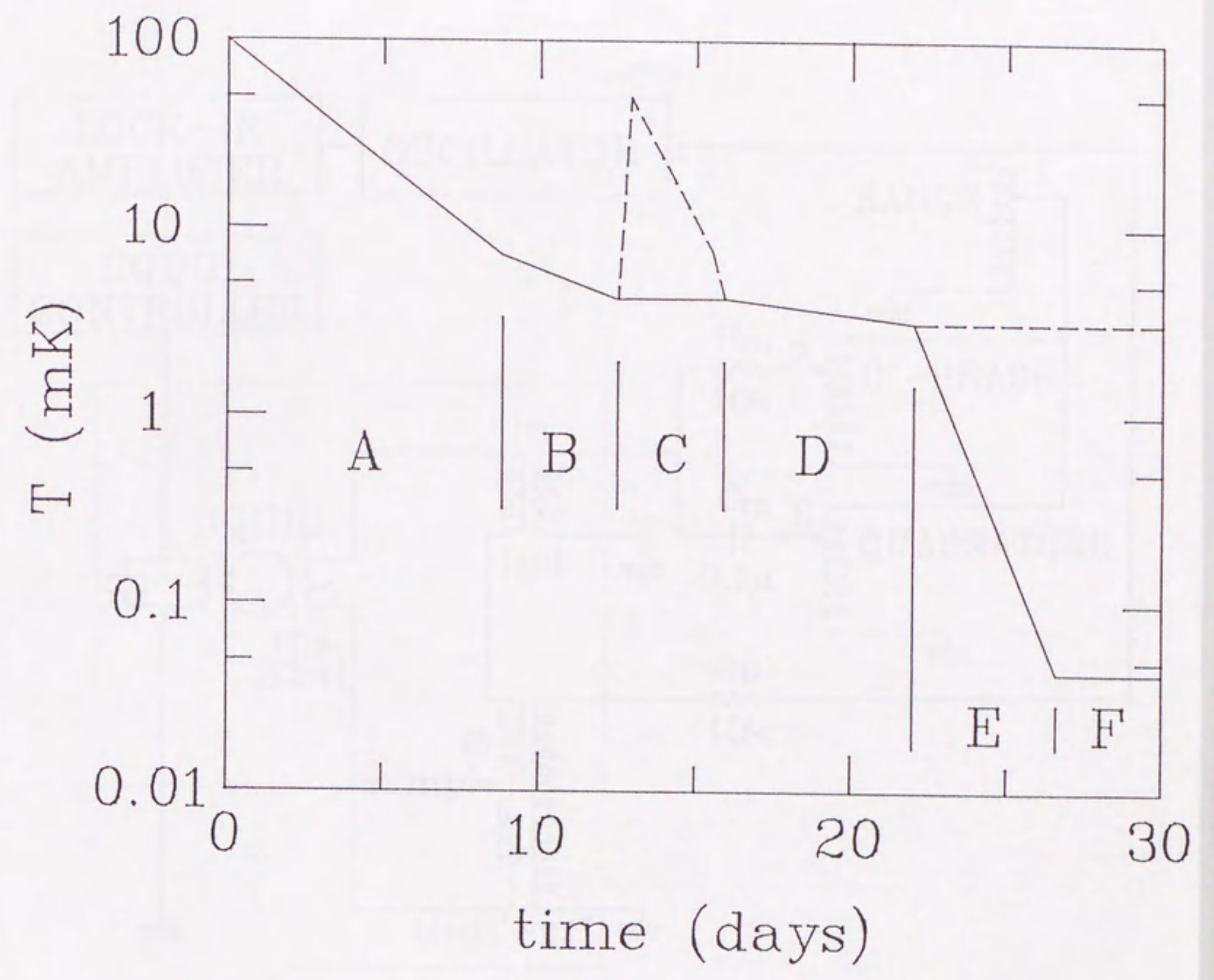


Fig. 2-3

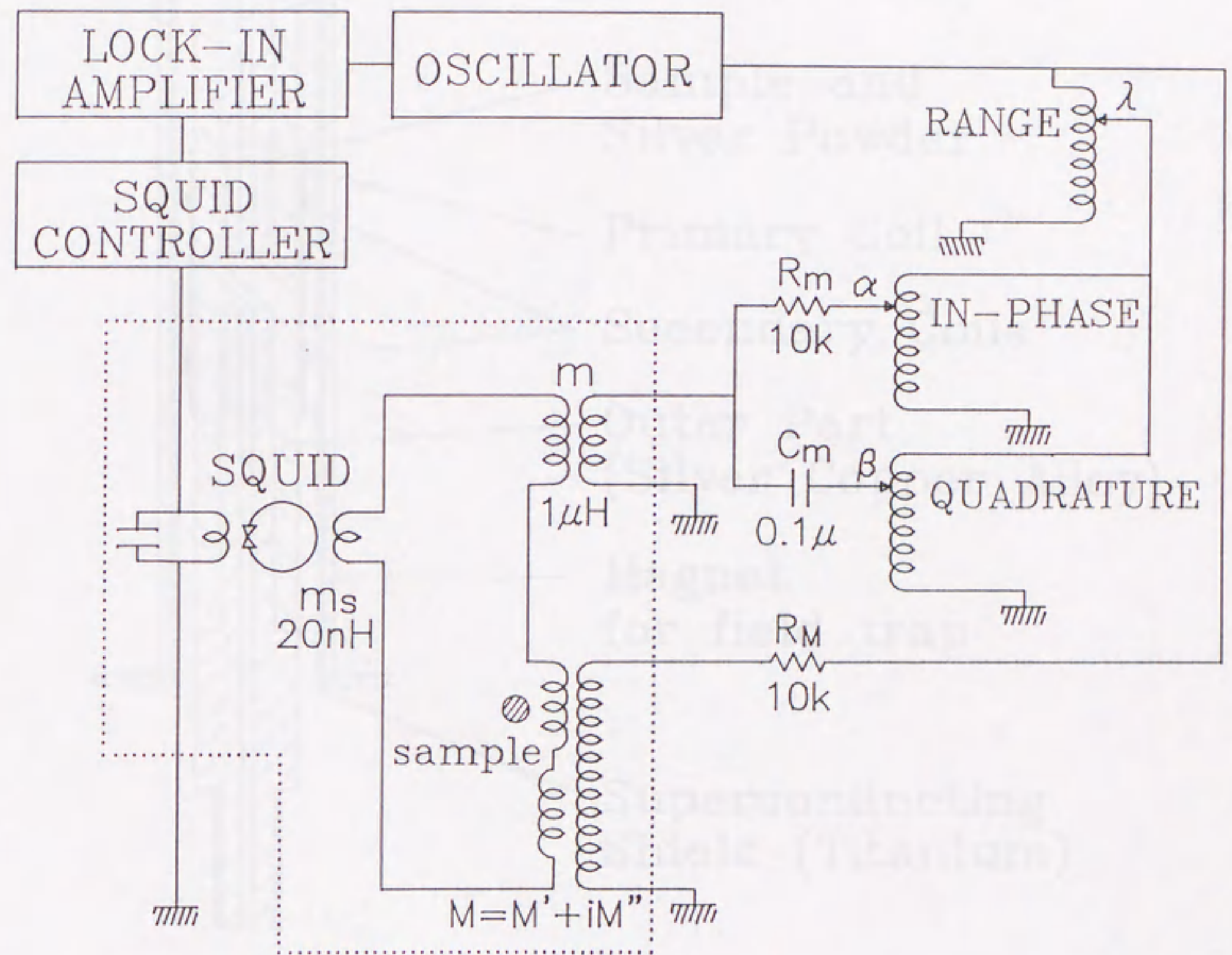


Fig. 2-4

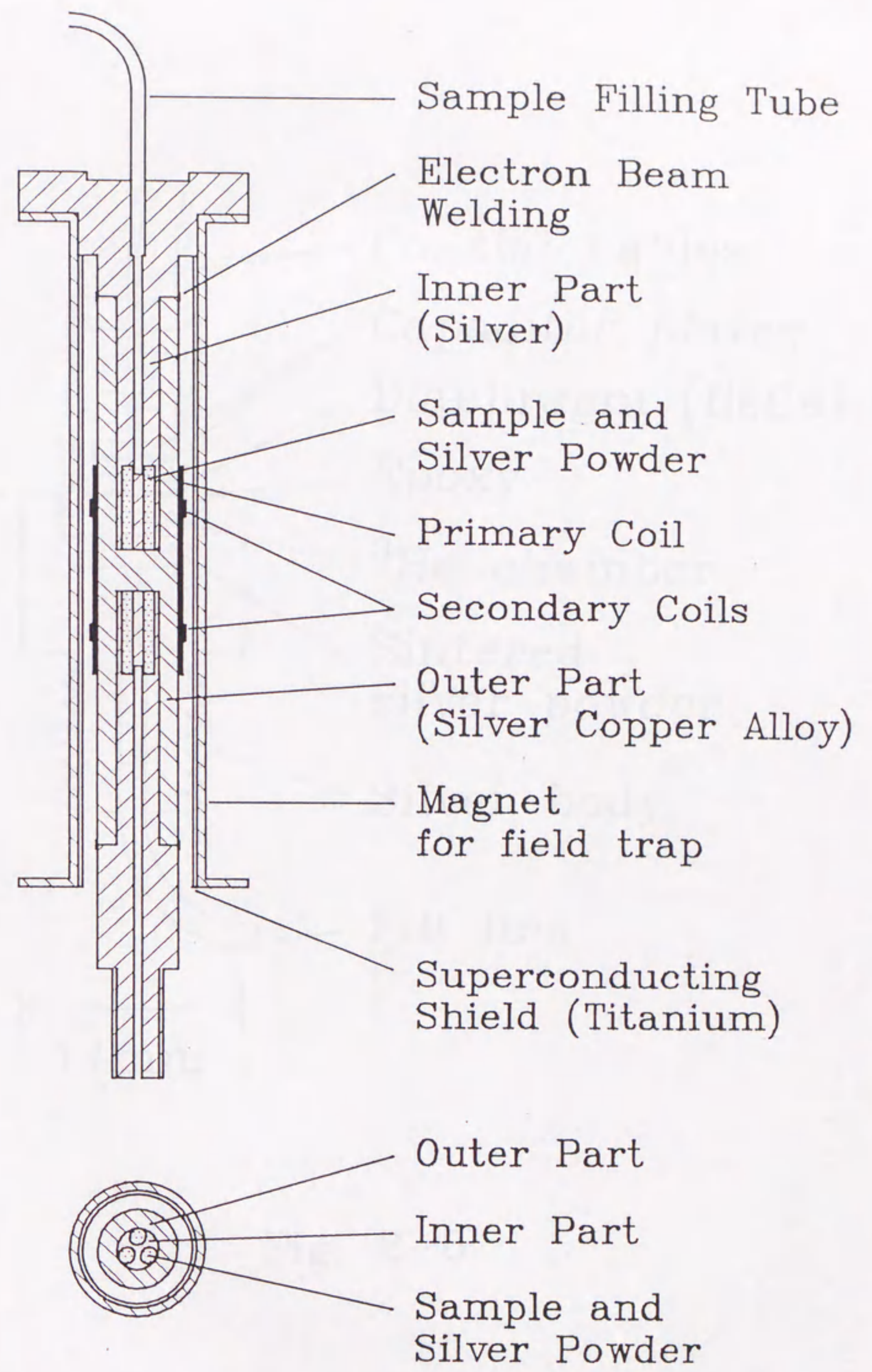


Fig. 2-5



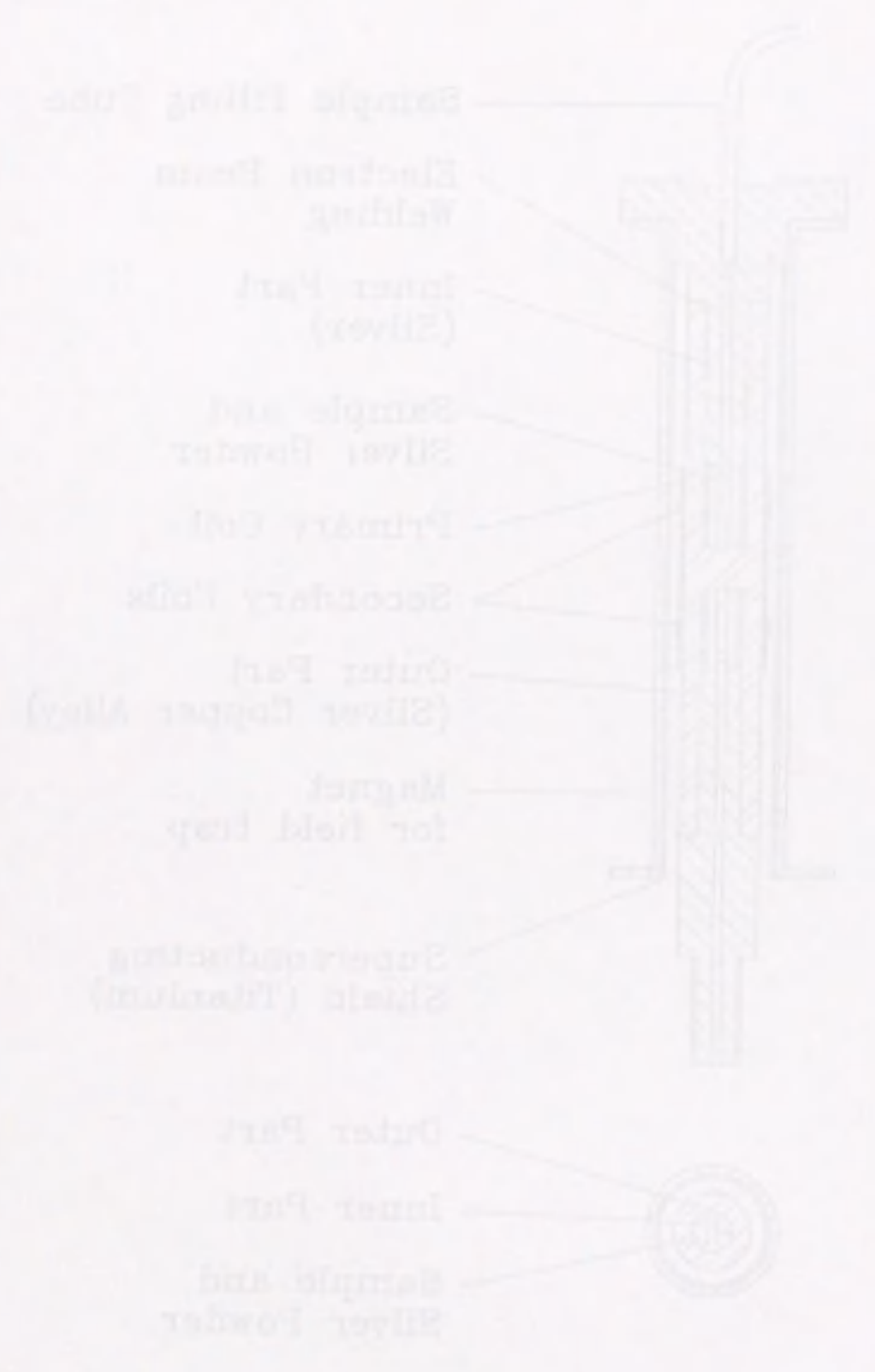


Fig. 2-5

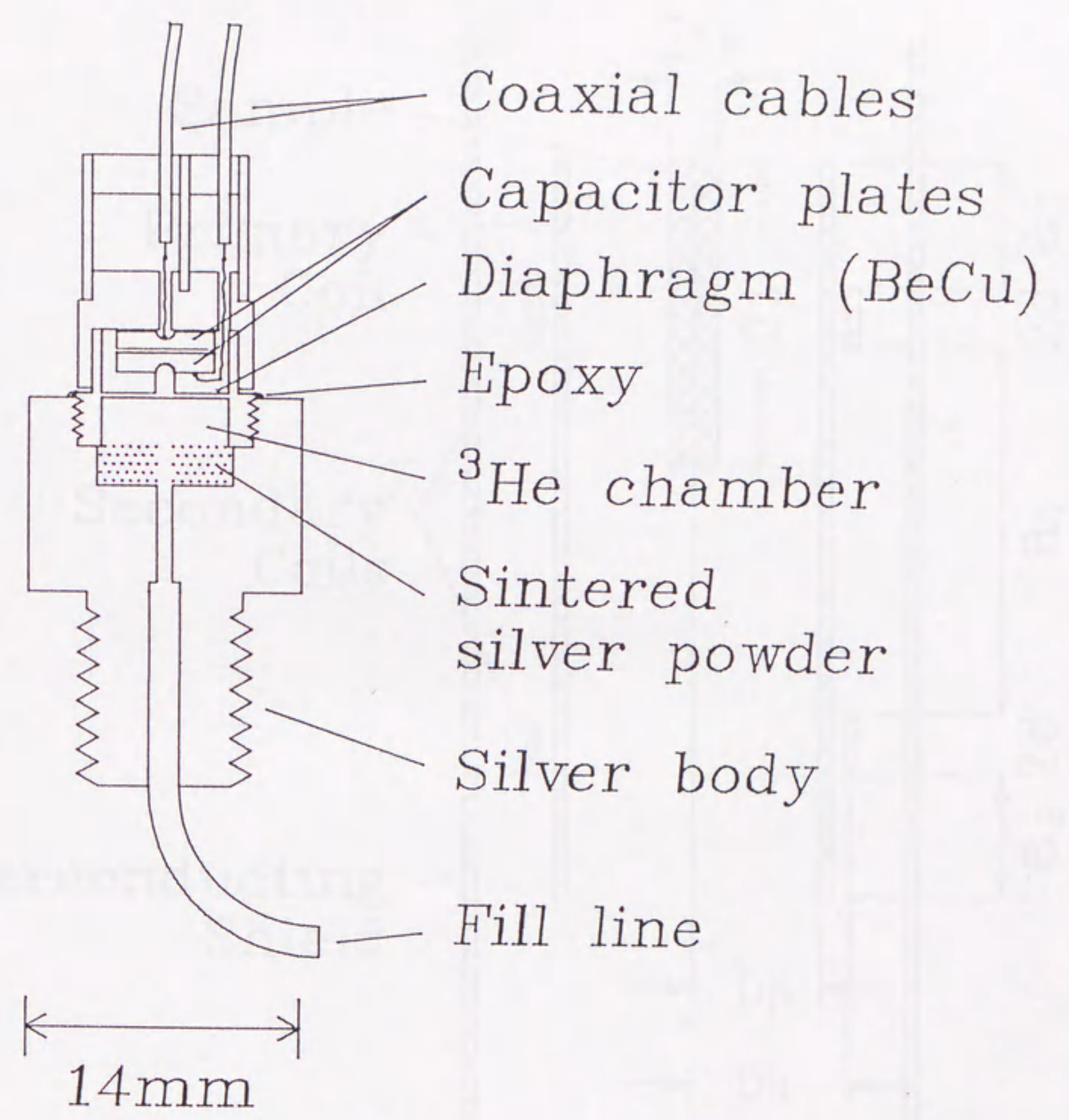


Fig. 2-6

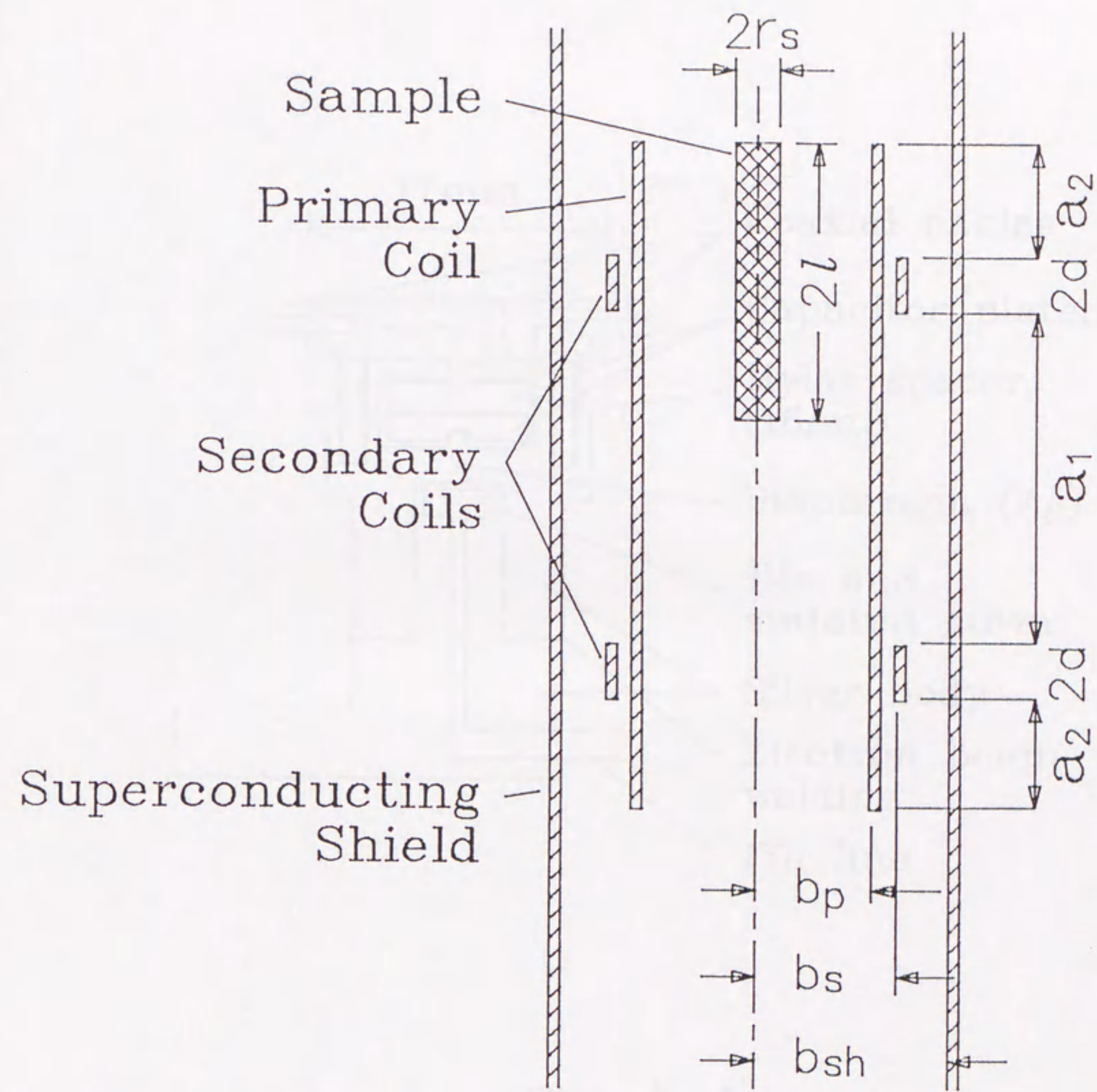


Fig. 4-1

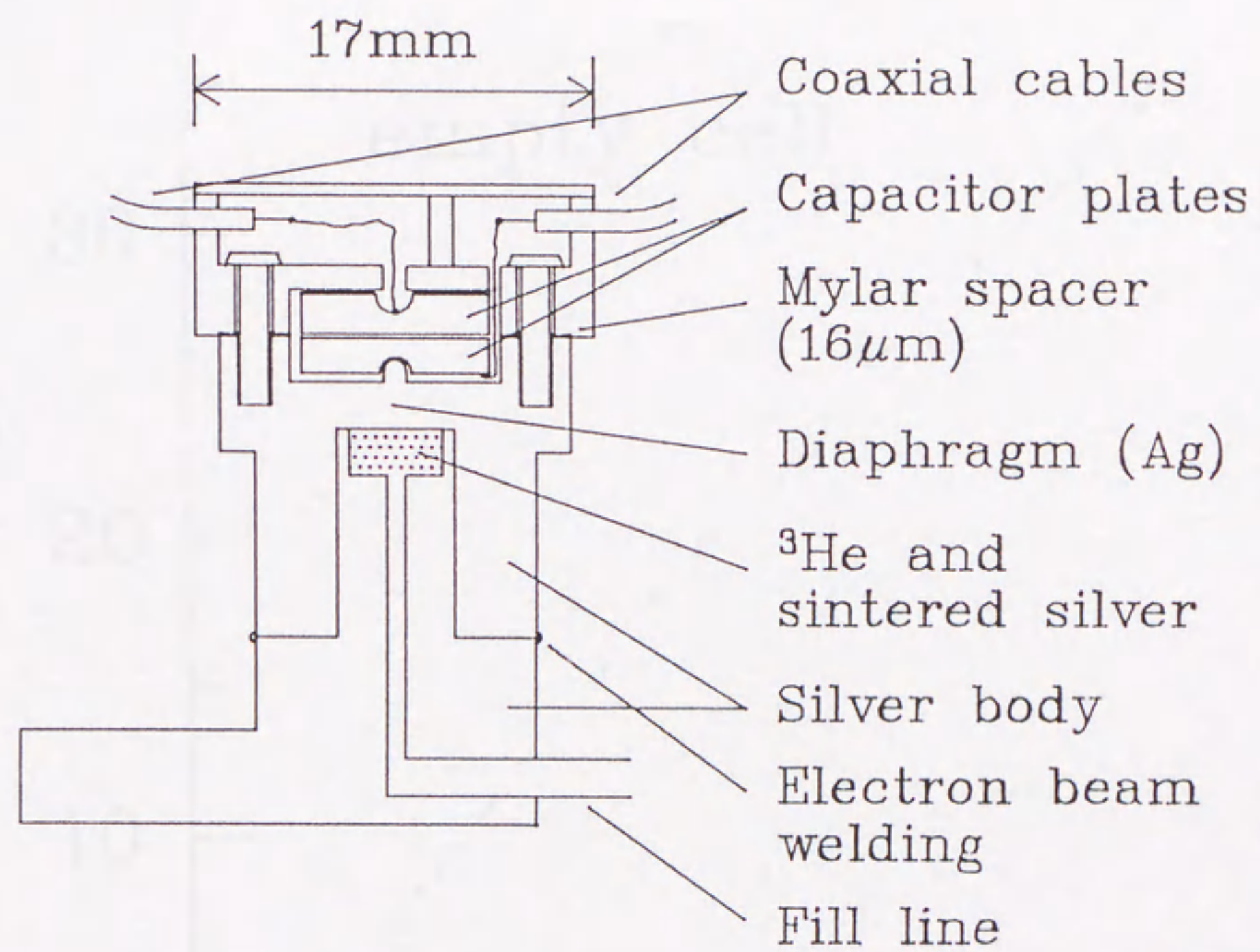


Fig. 5-1

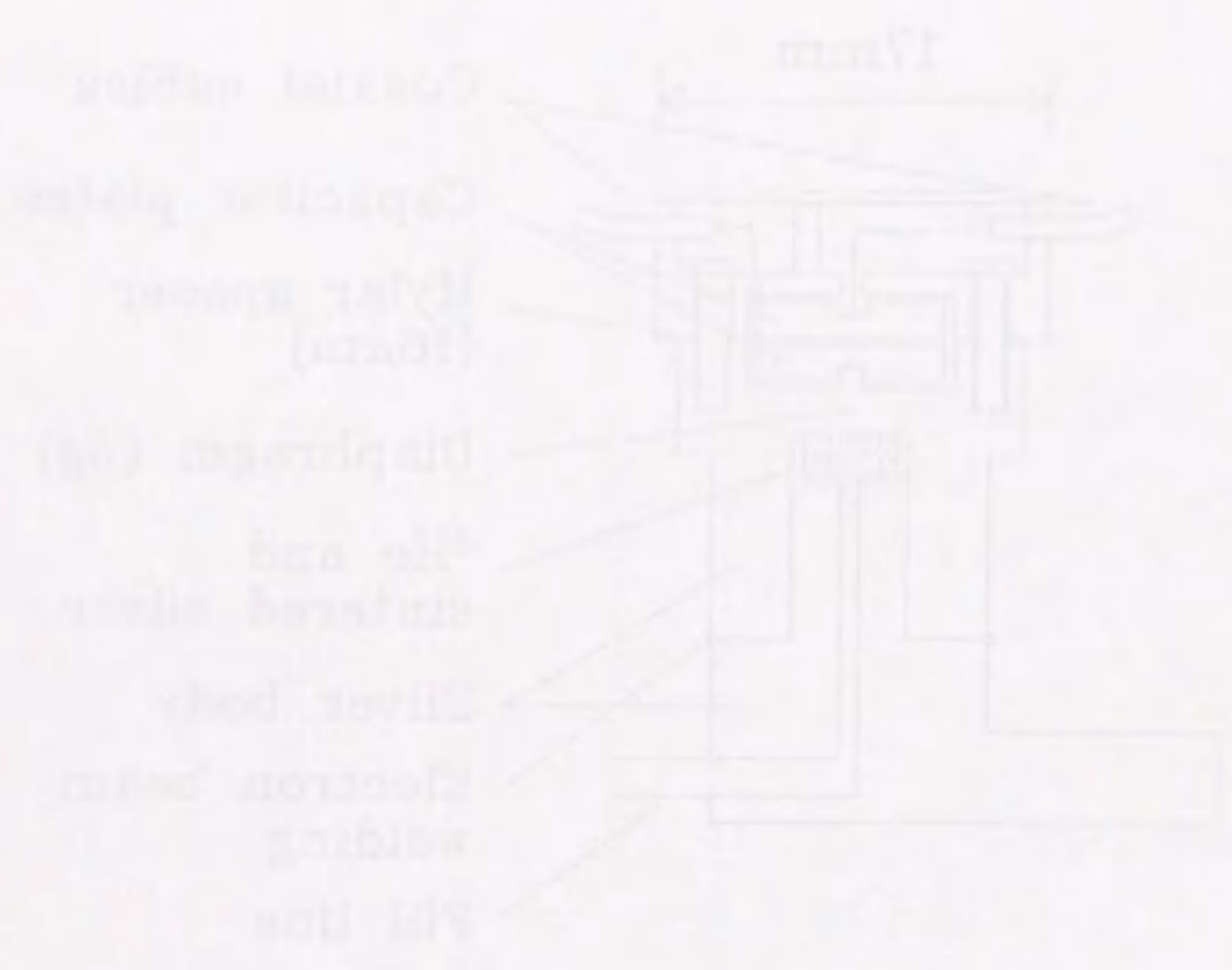


Fig. 5-1

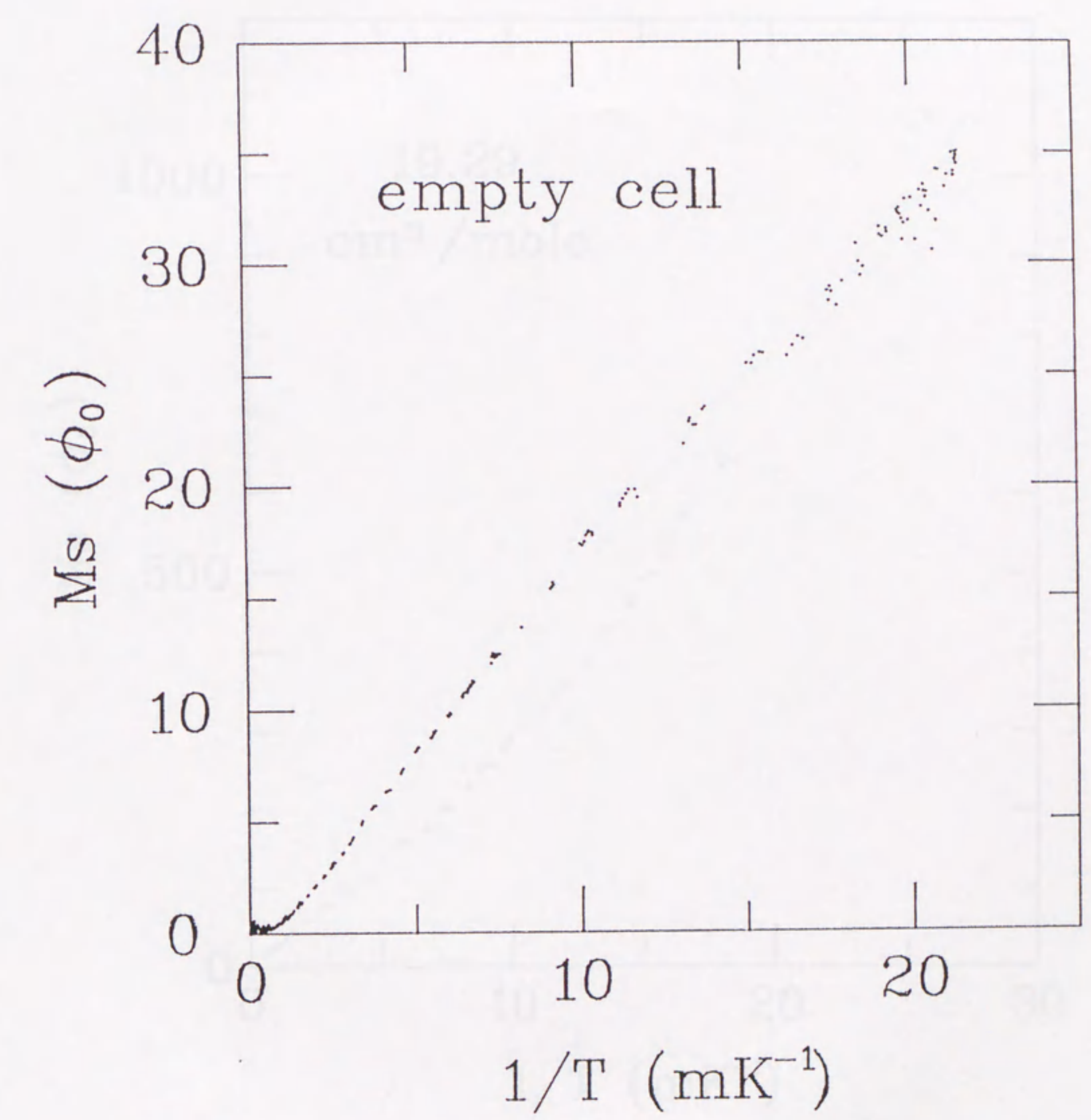


Fig. 5-2

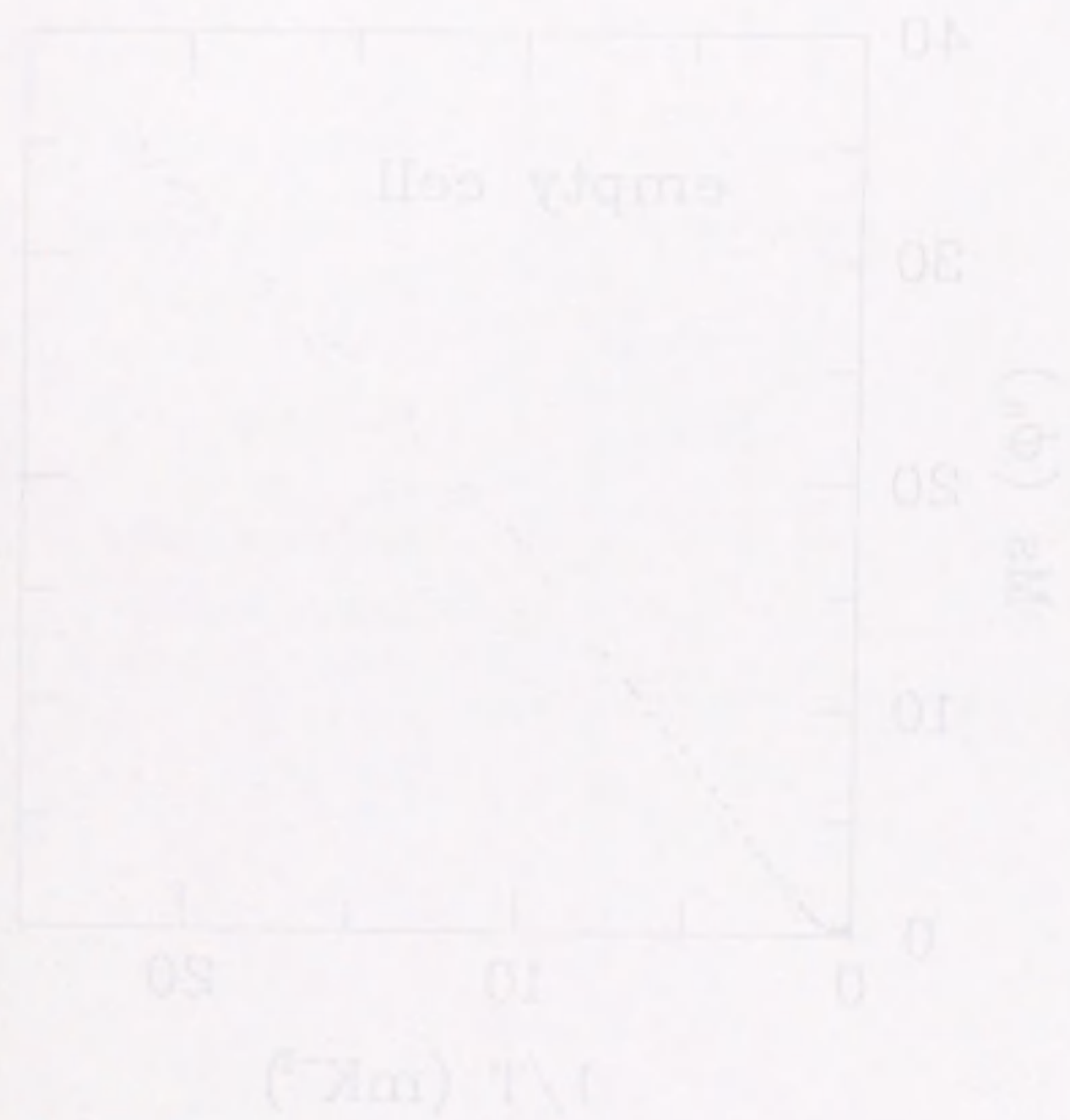


Fig. 6-2

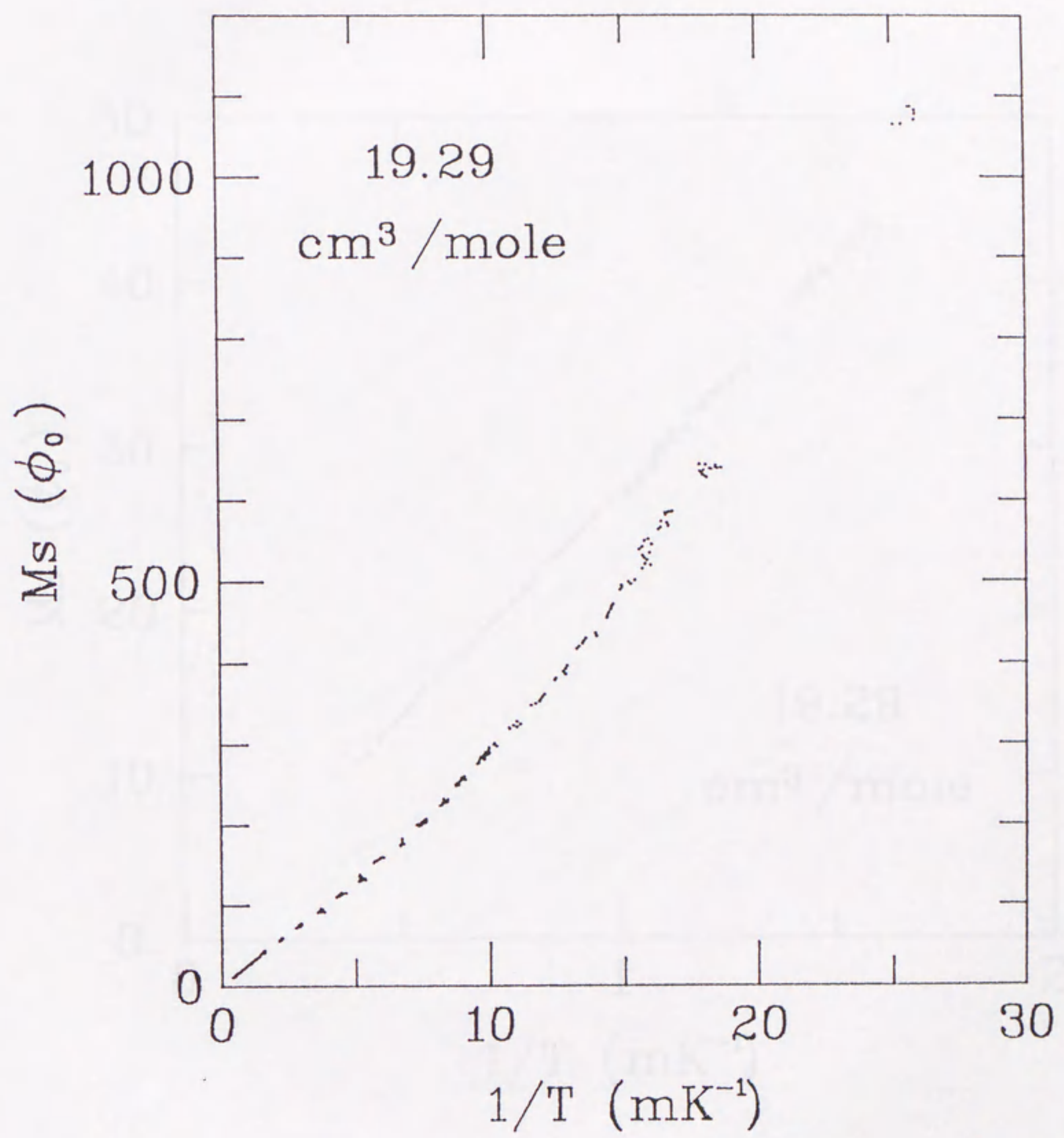


Fig. 6-1

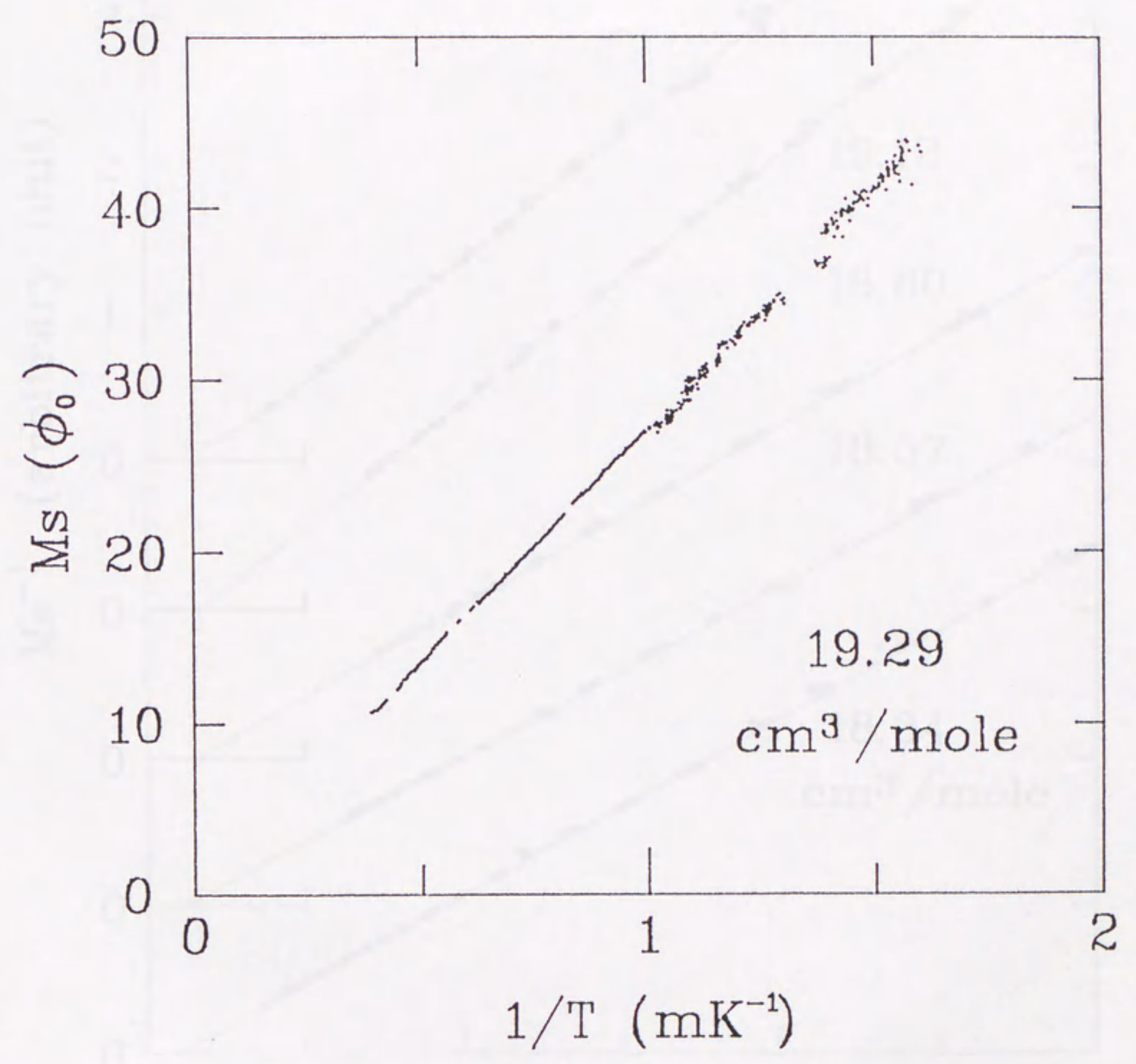
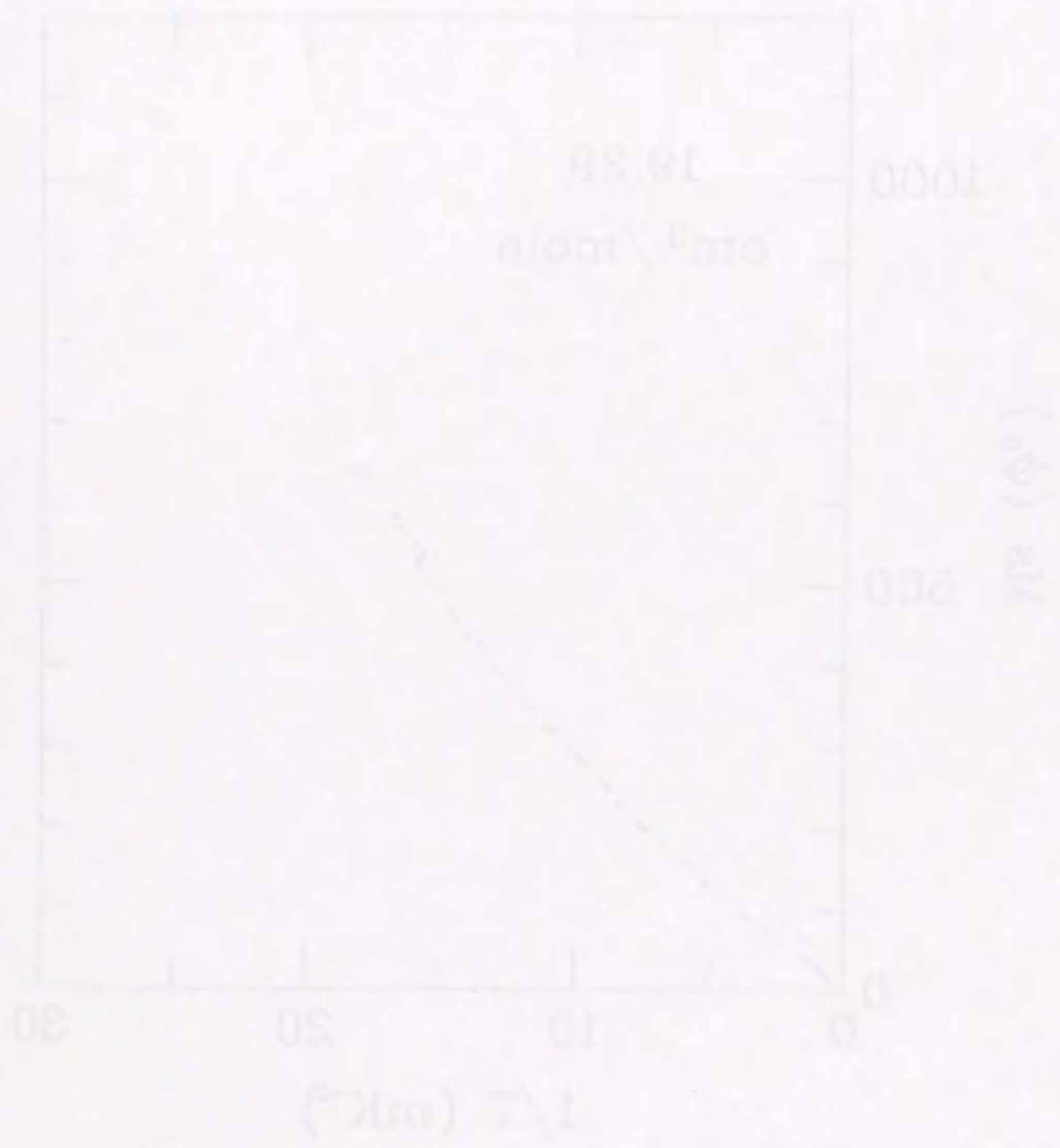


Fig. 6-2

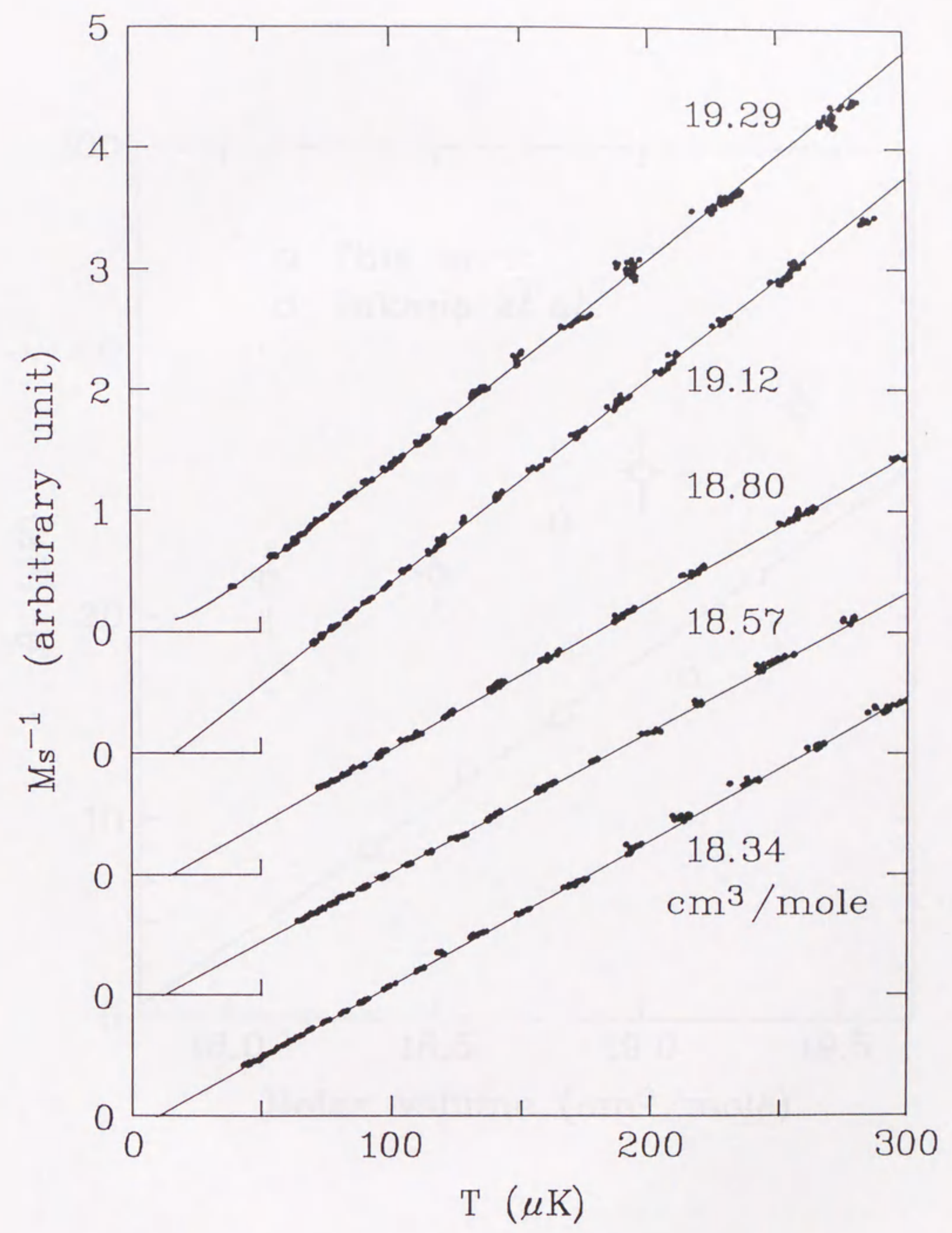
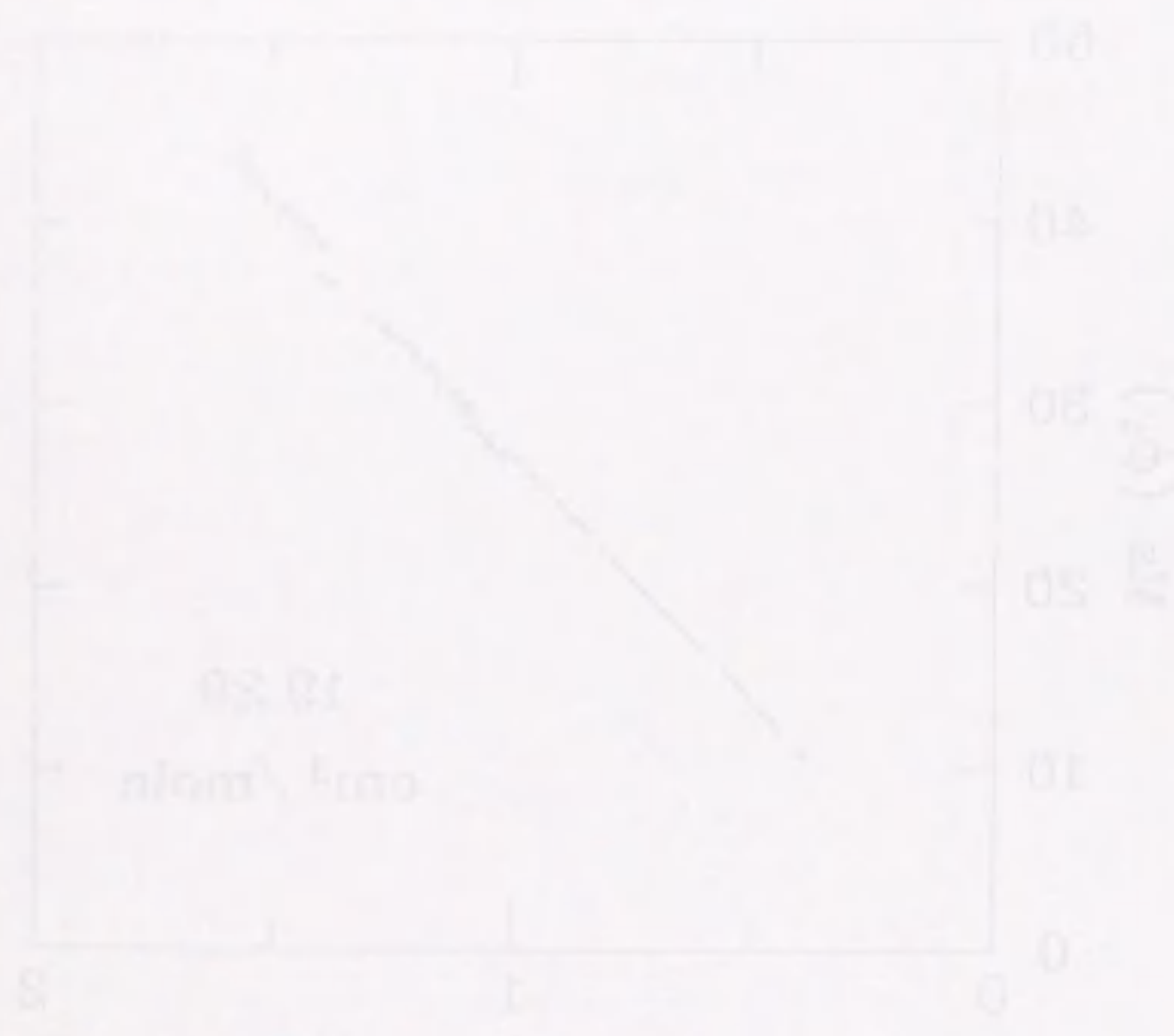


Fig. 6-3

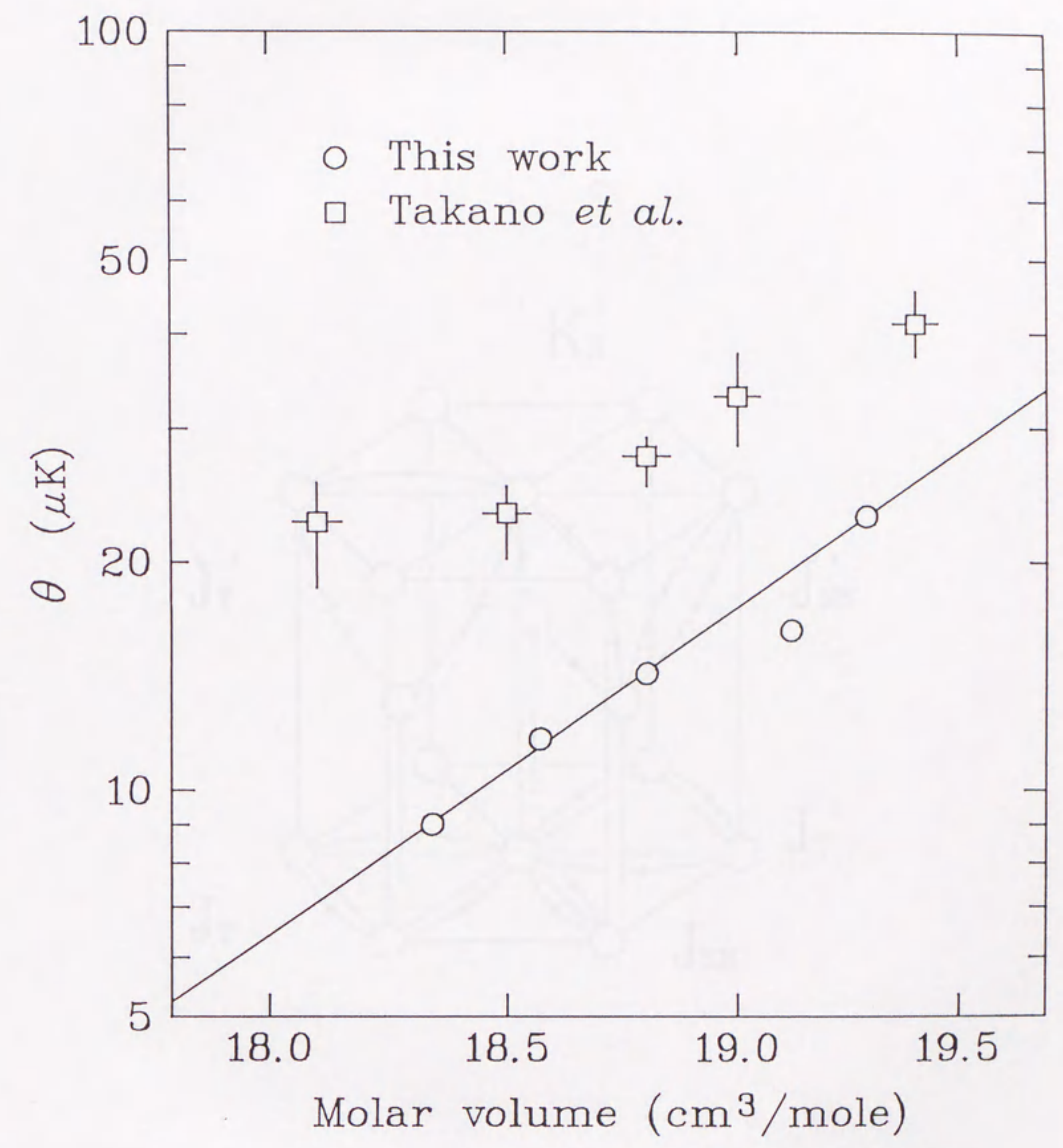
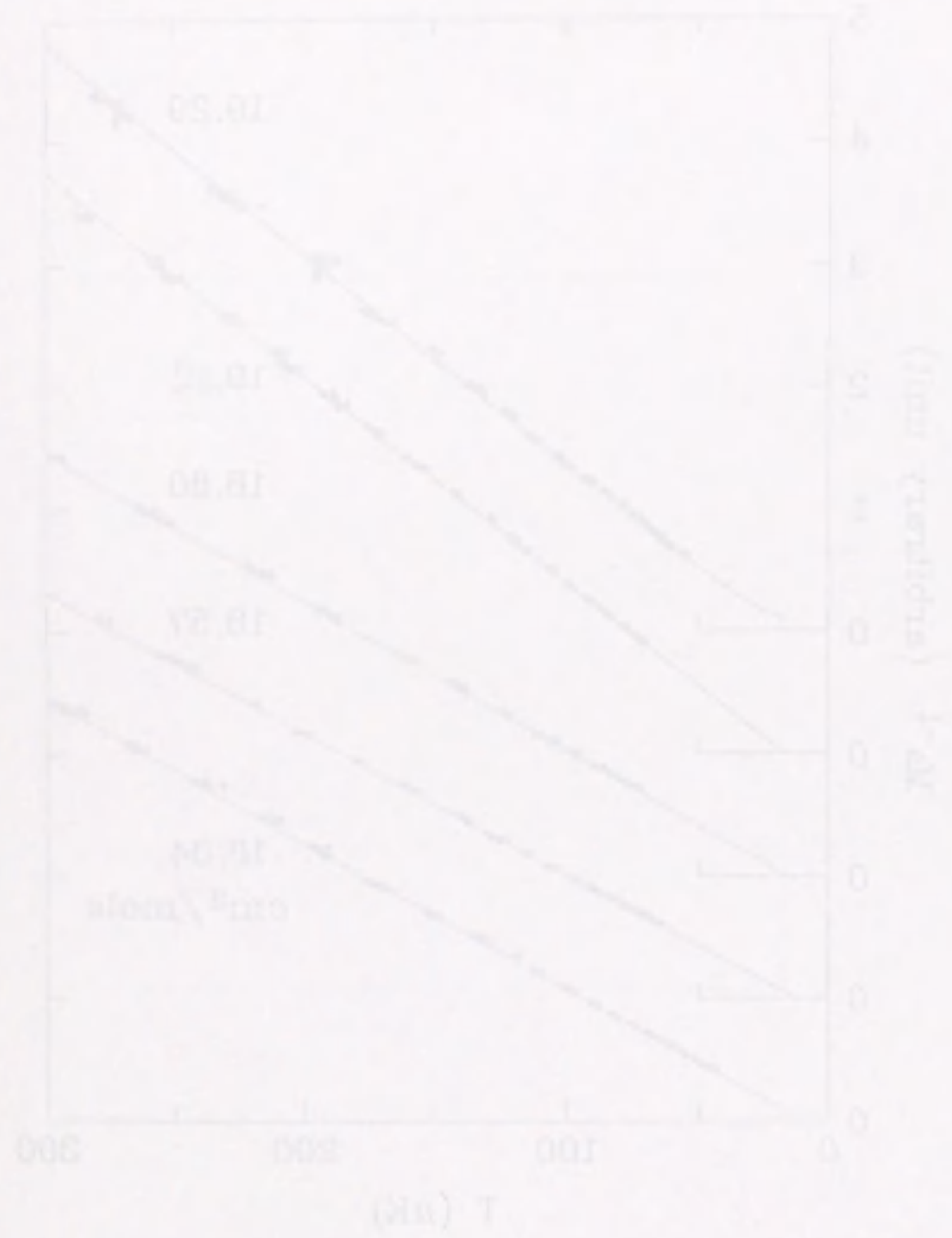
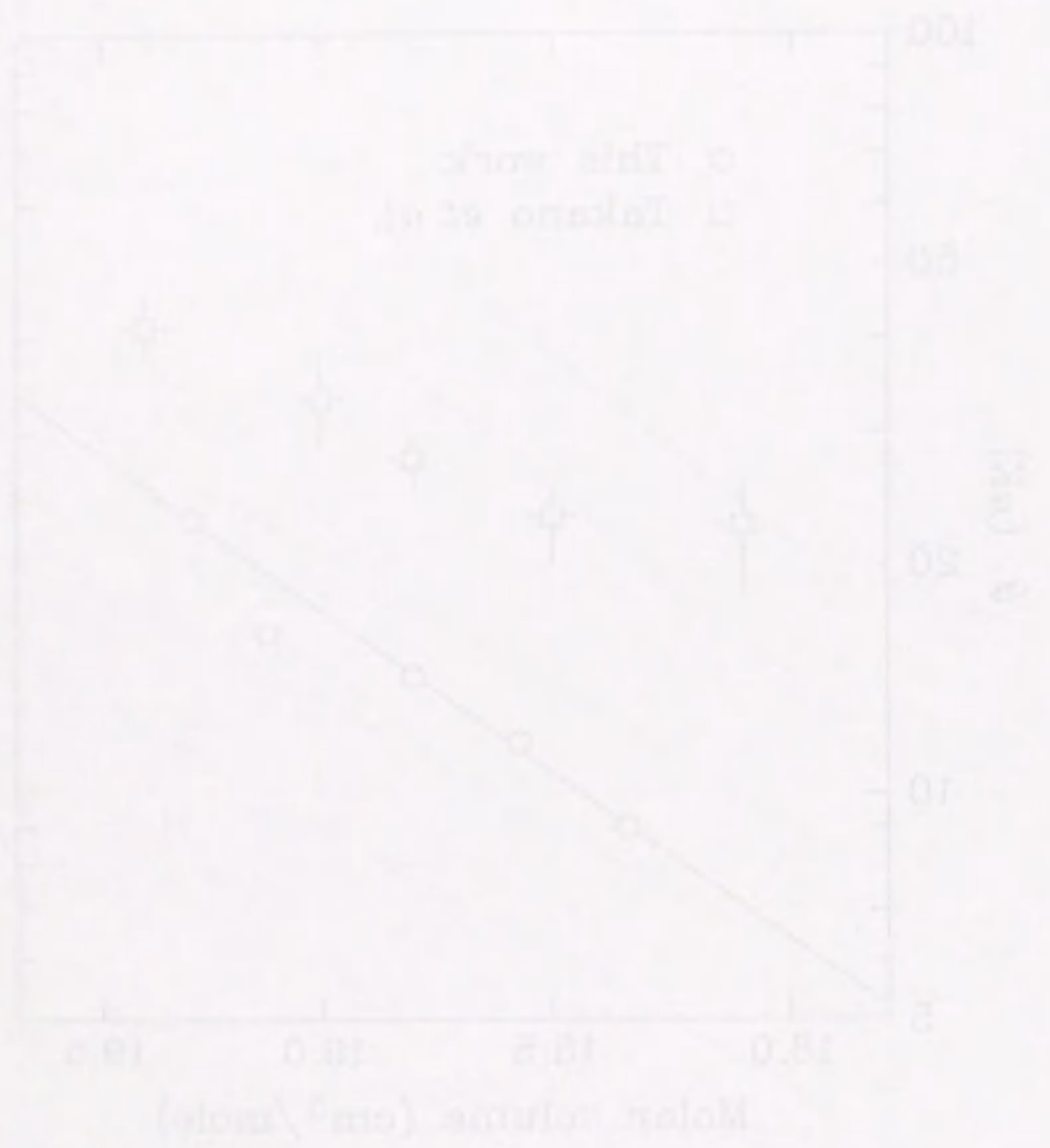


Fig. 6-4





This work  
 by Tolano et al.

Fig. 6-4

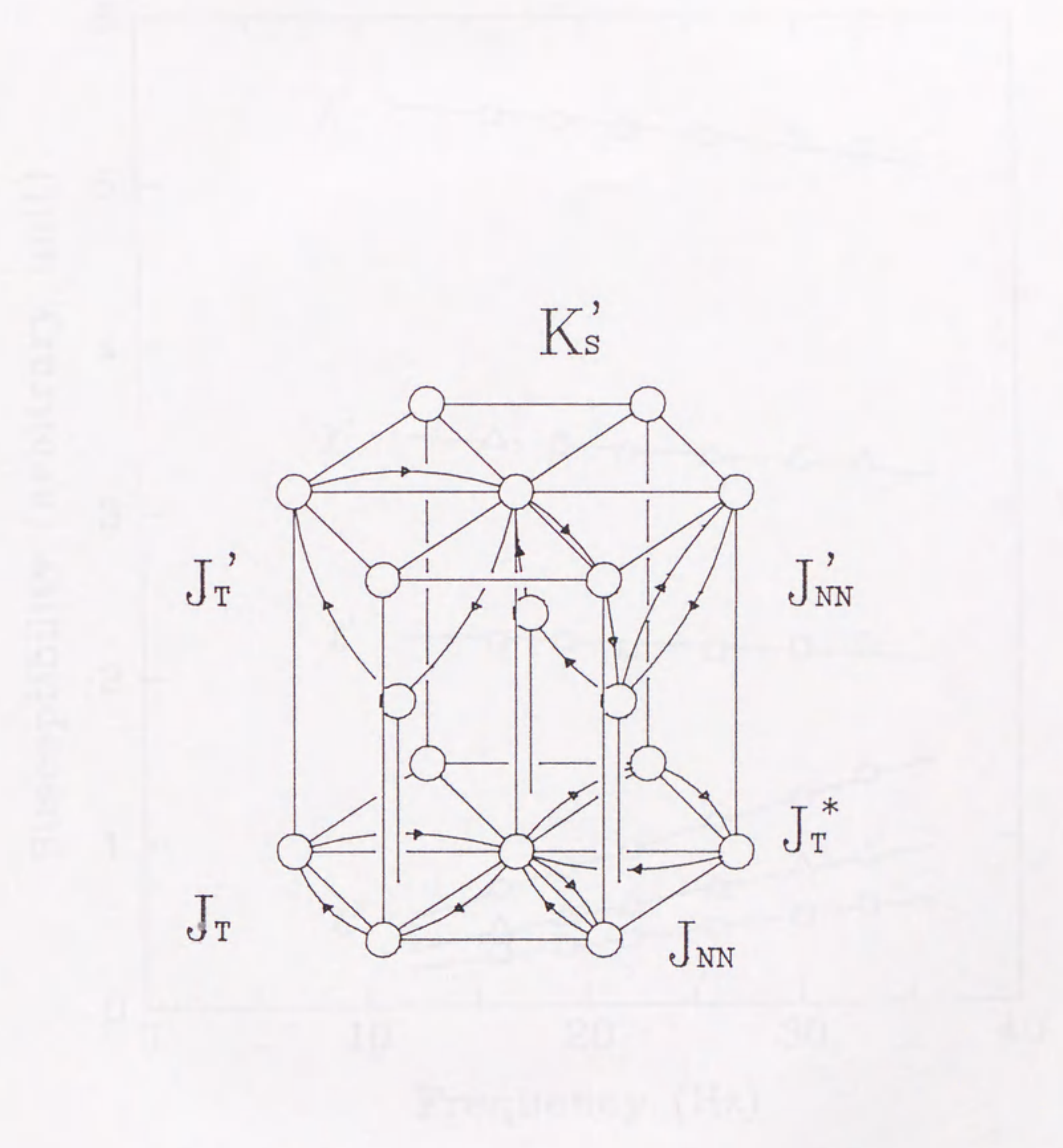


Fig. 6-5

Fig. 7-1

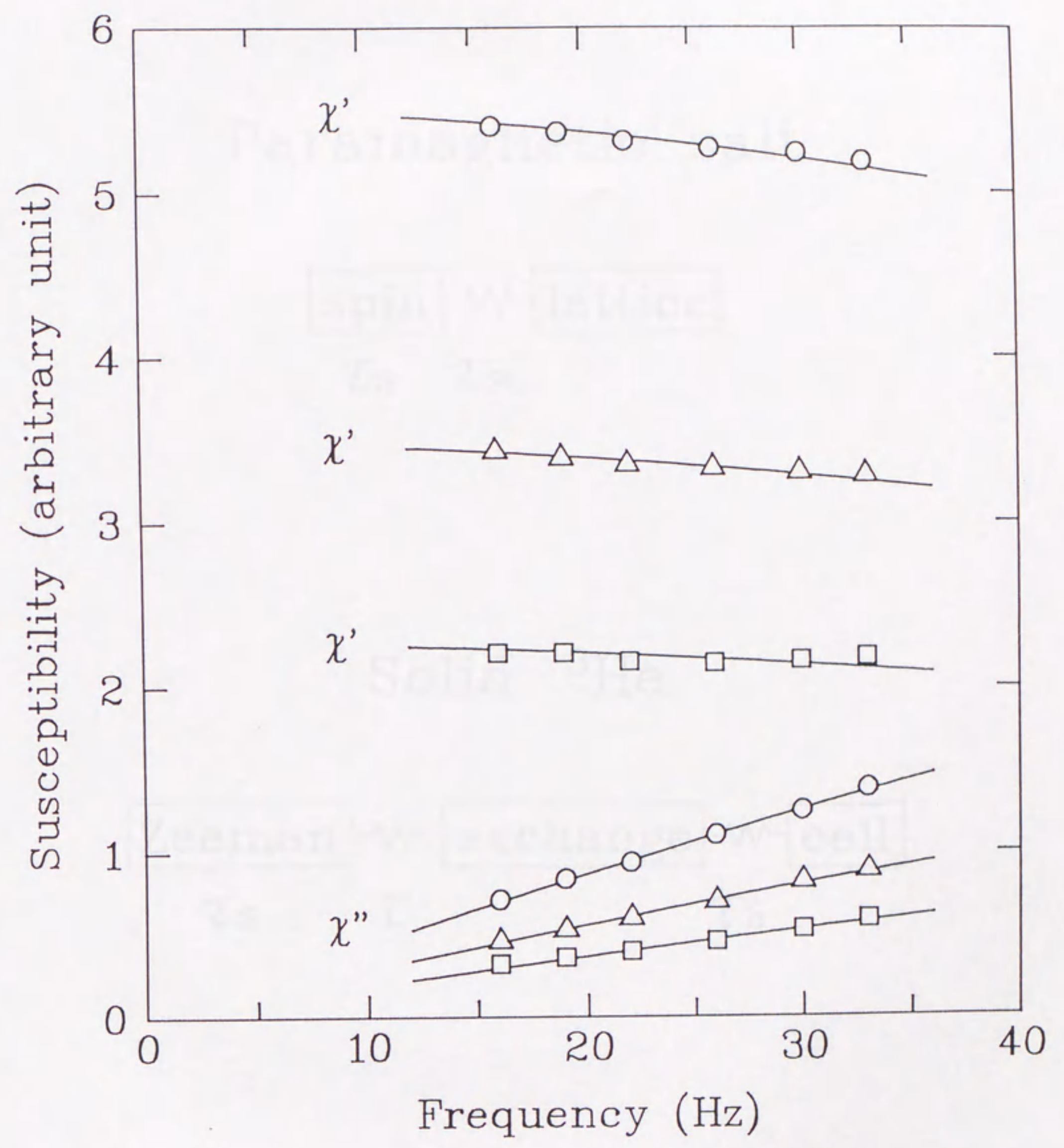


Fig. 7-1

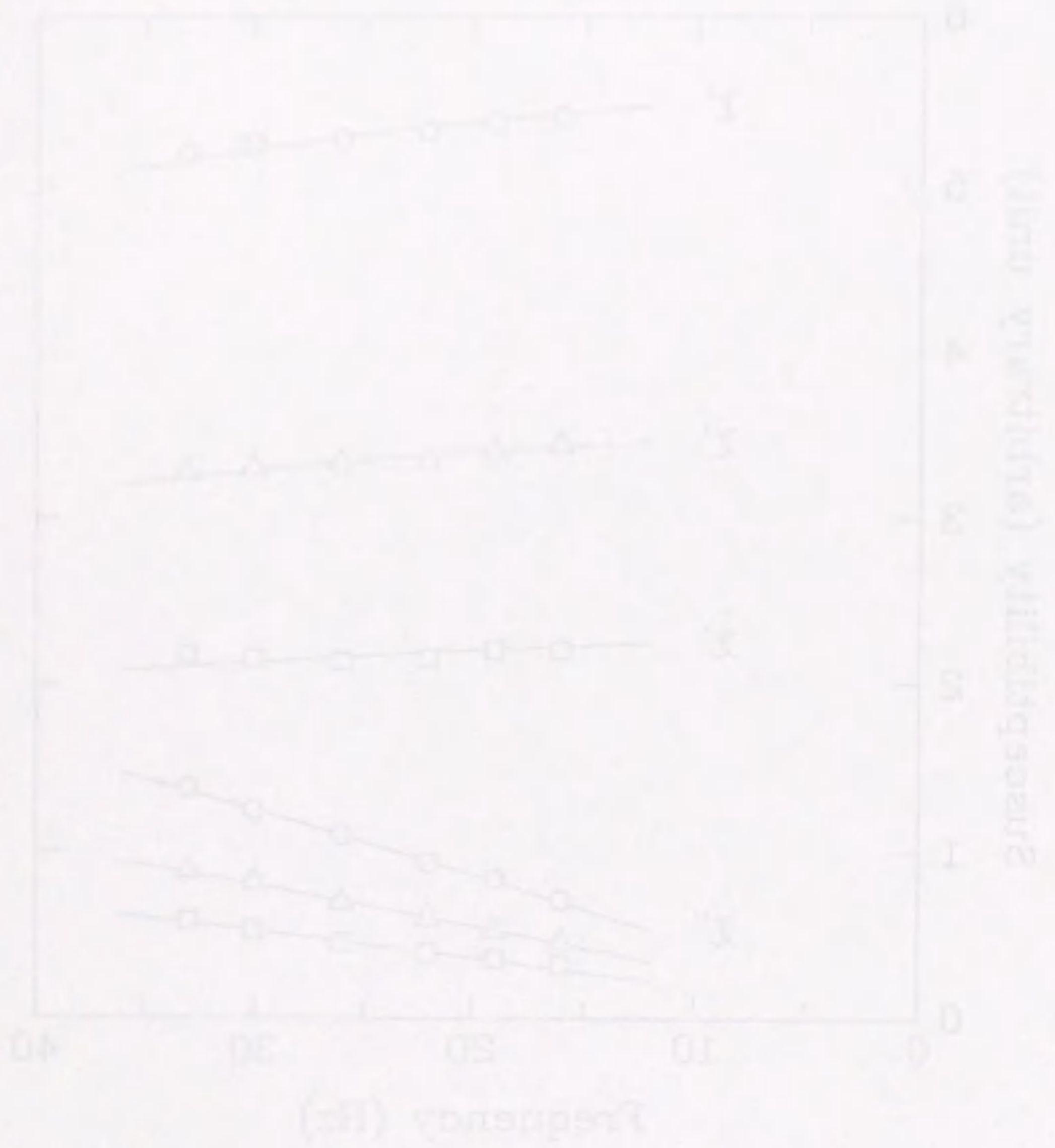
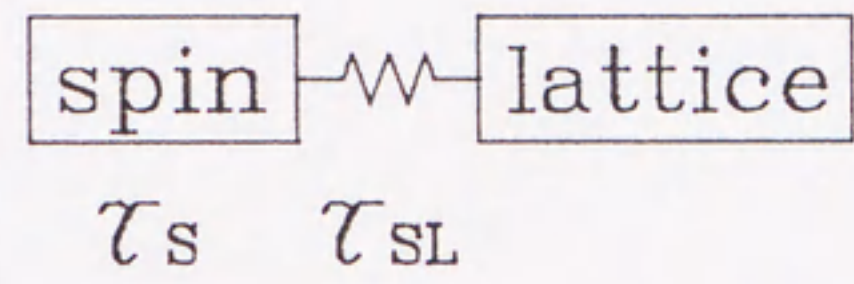


Fig. 7-1

Paramagnetic salt



Solid  $^3\text{He}$

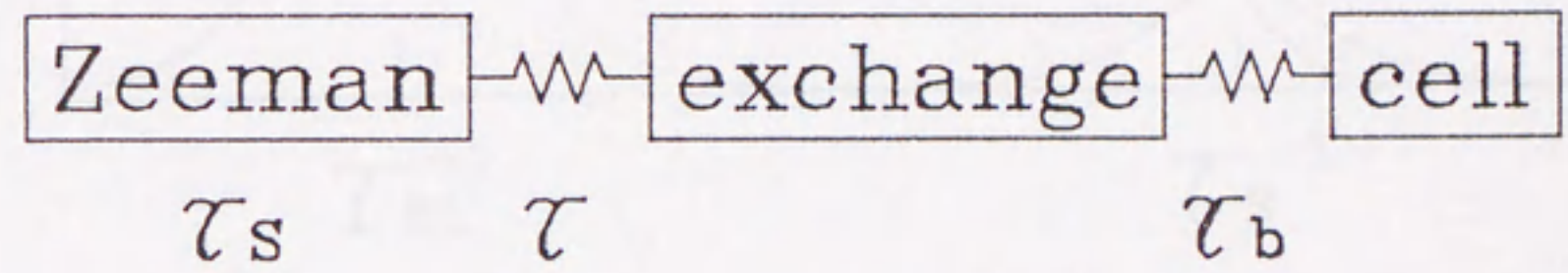


Fig. 7-2

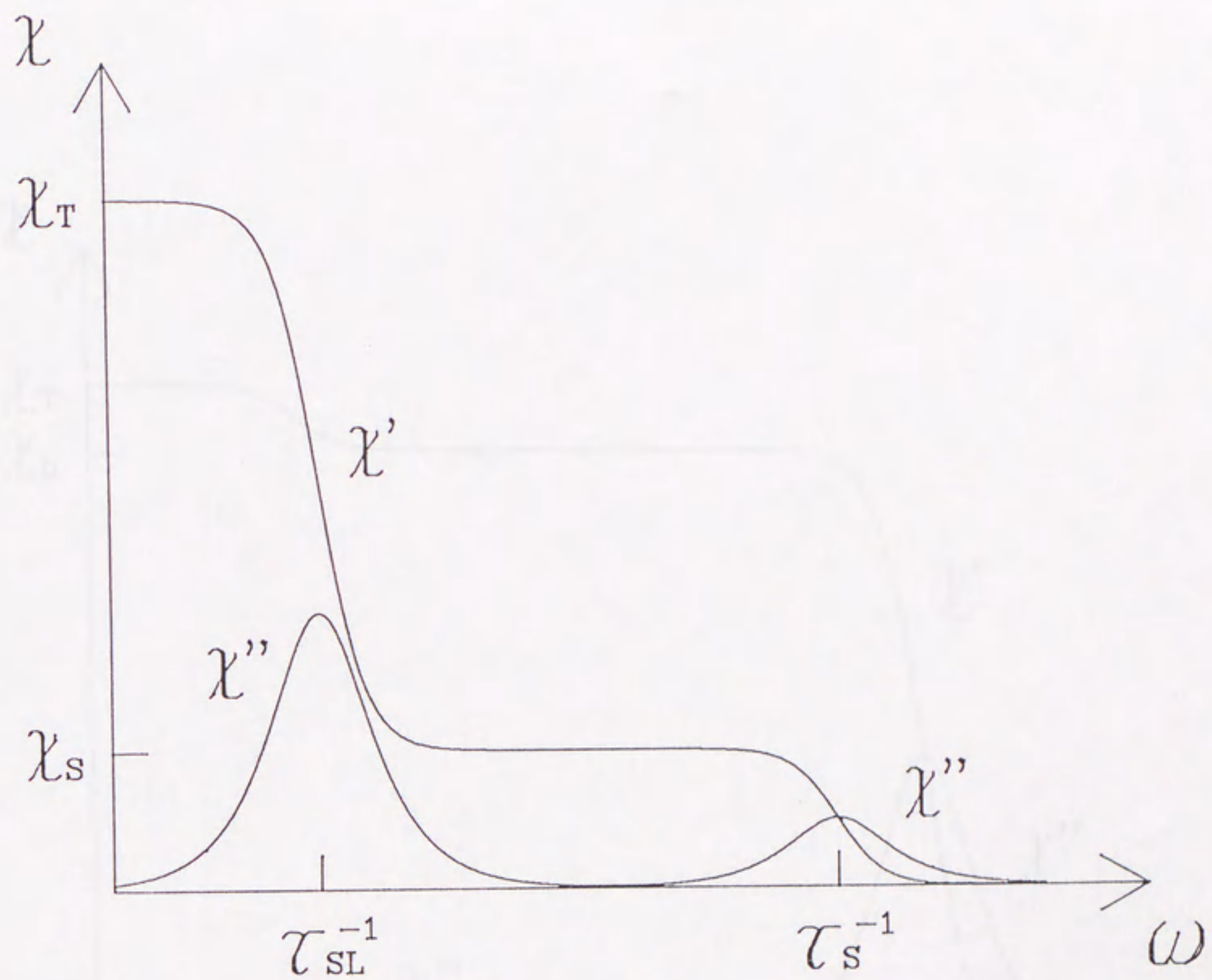


Fig. 7-3

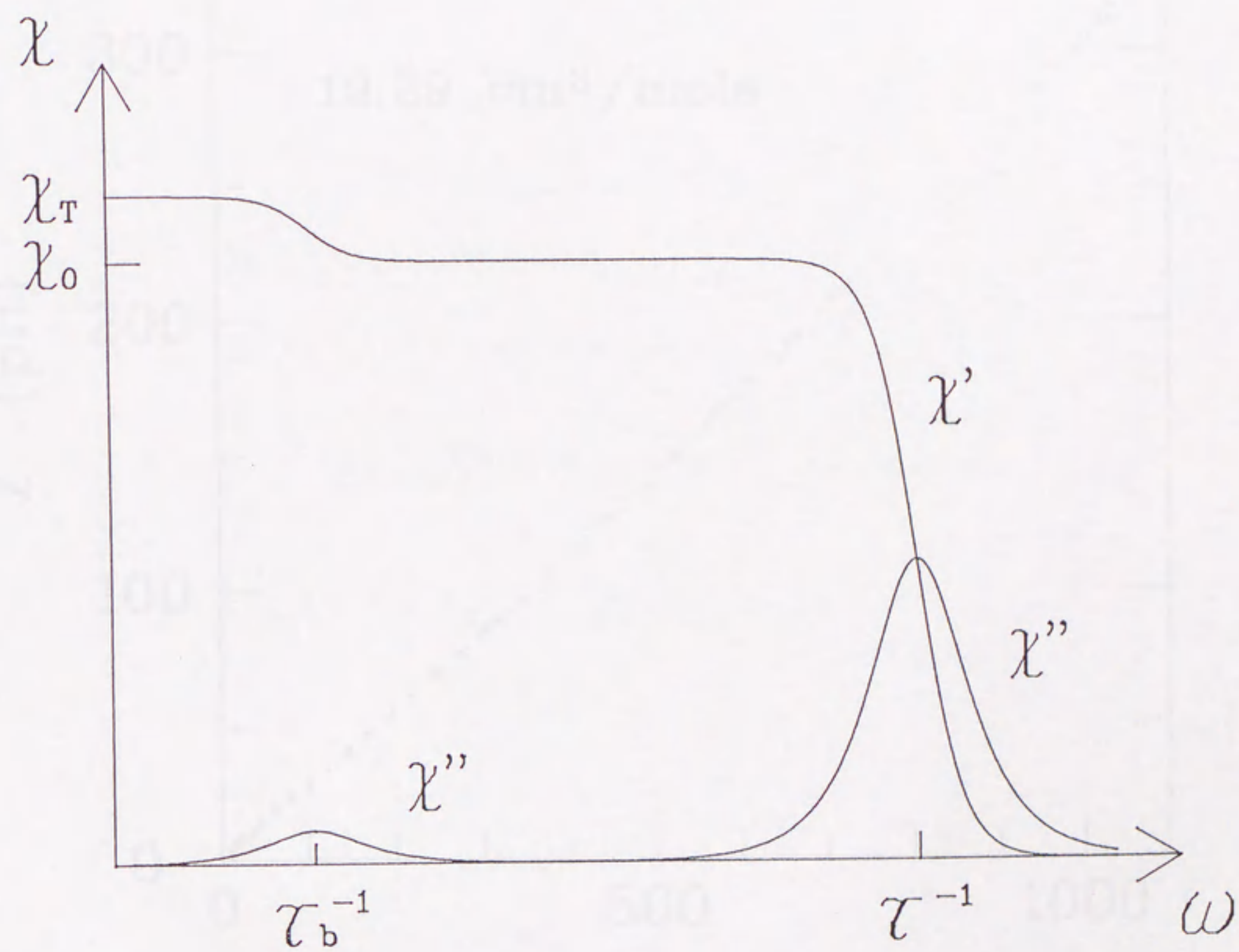


Fig. 7-4

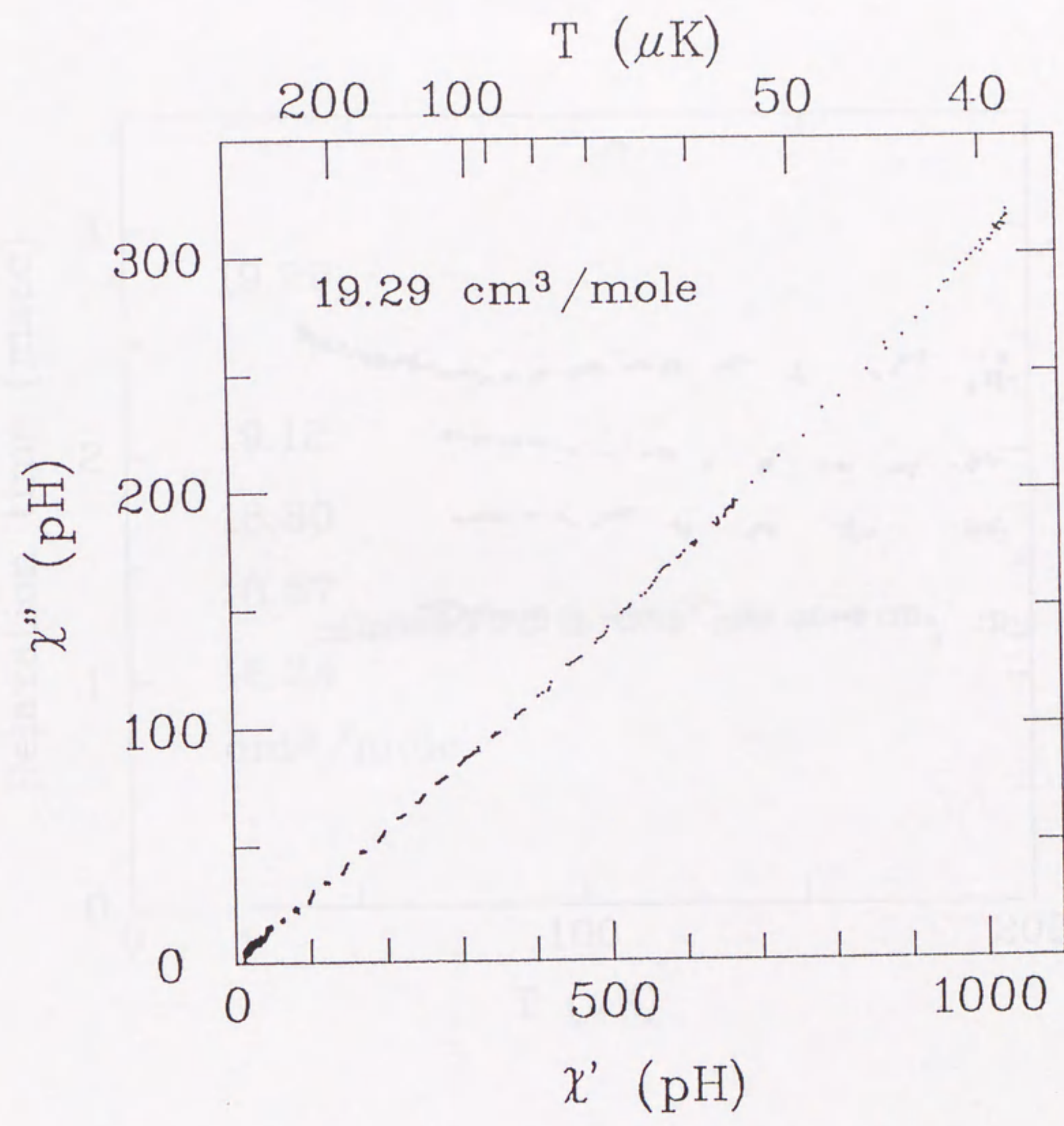


Fig. 7-5

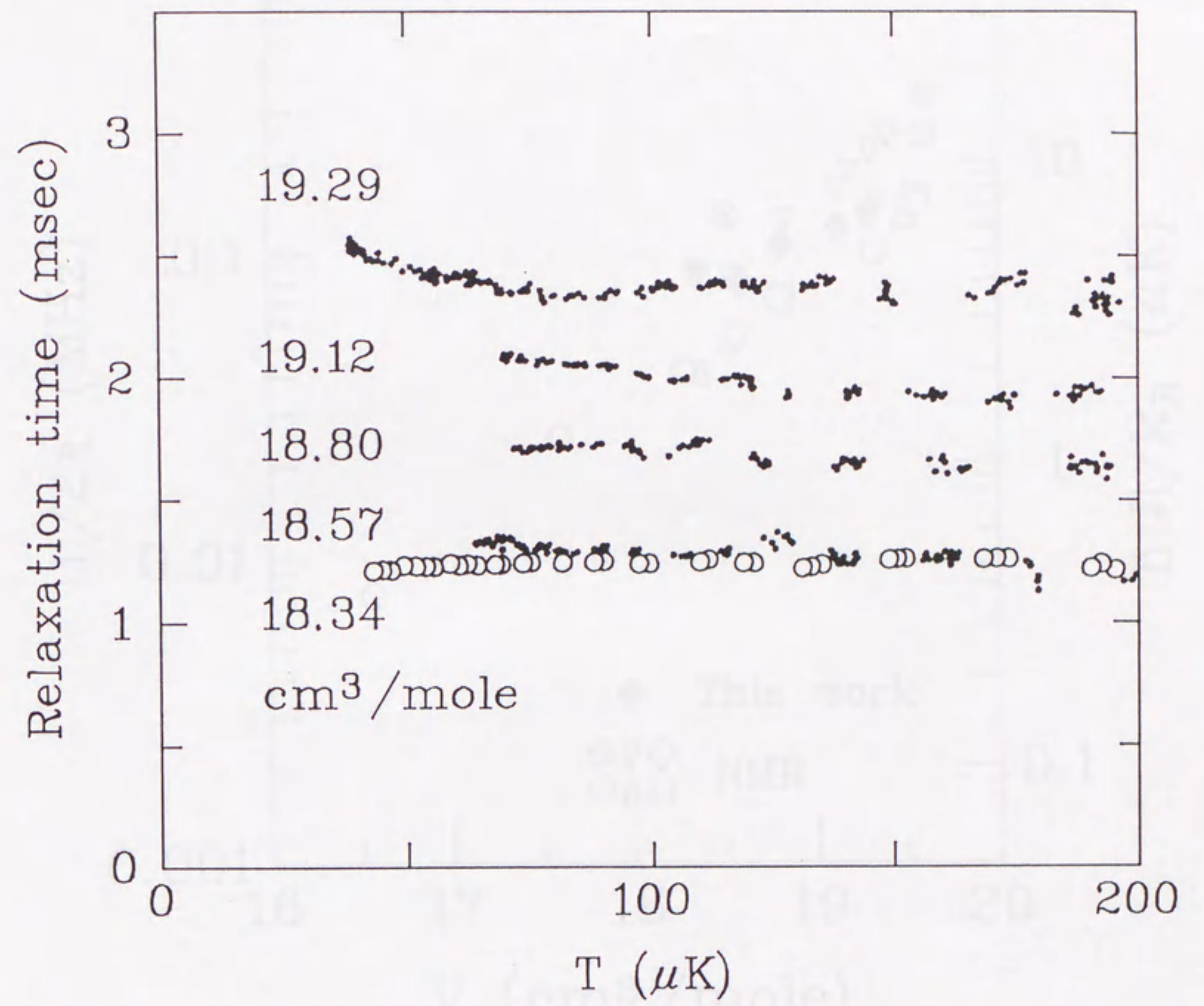
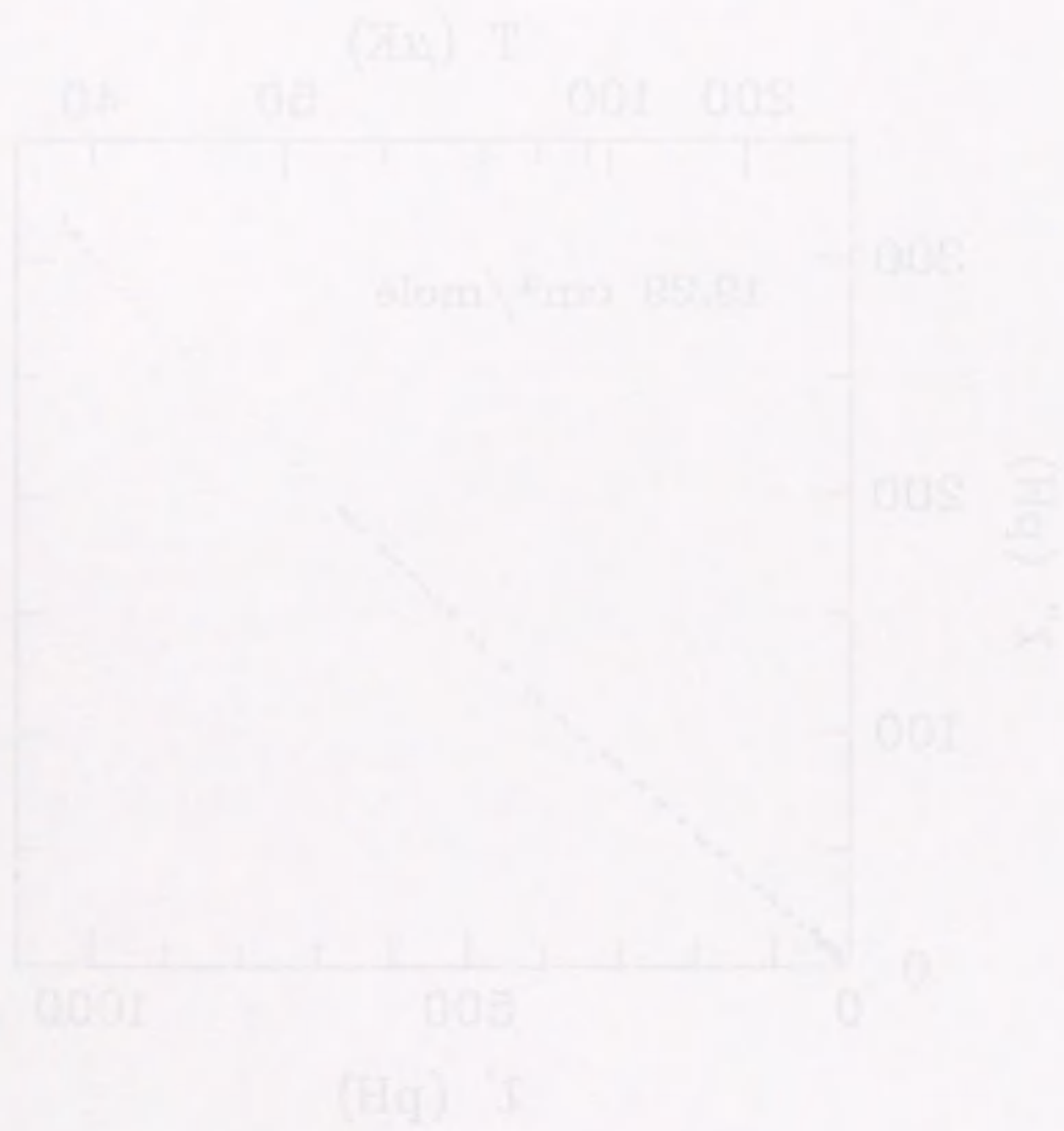


Fig. 7-6

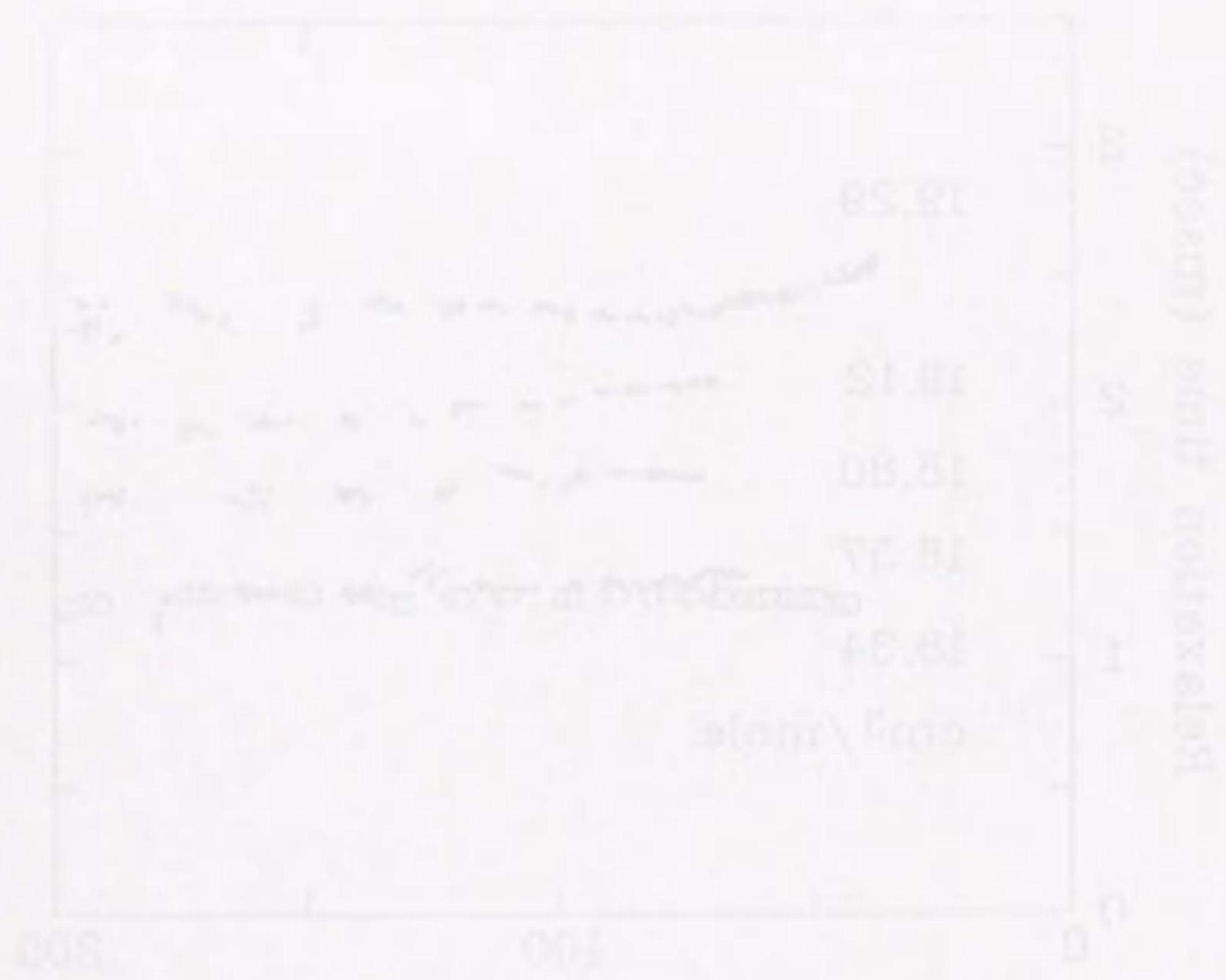


Fig. 7-8

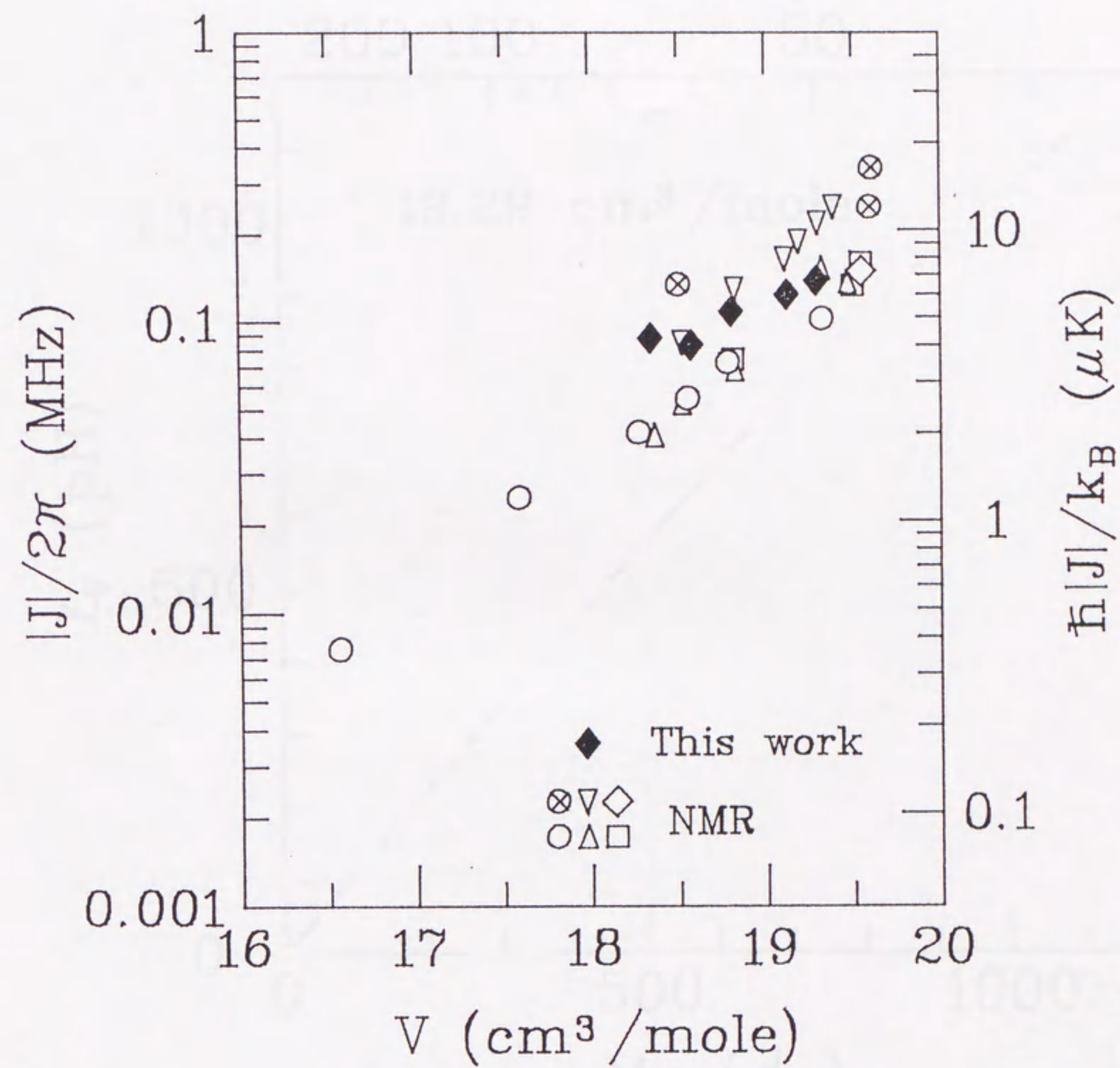


Fig. 7-7



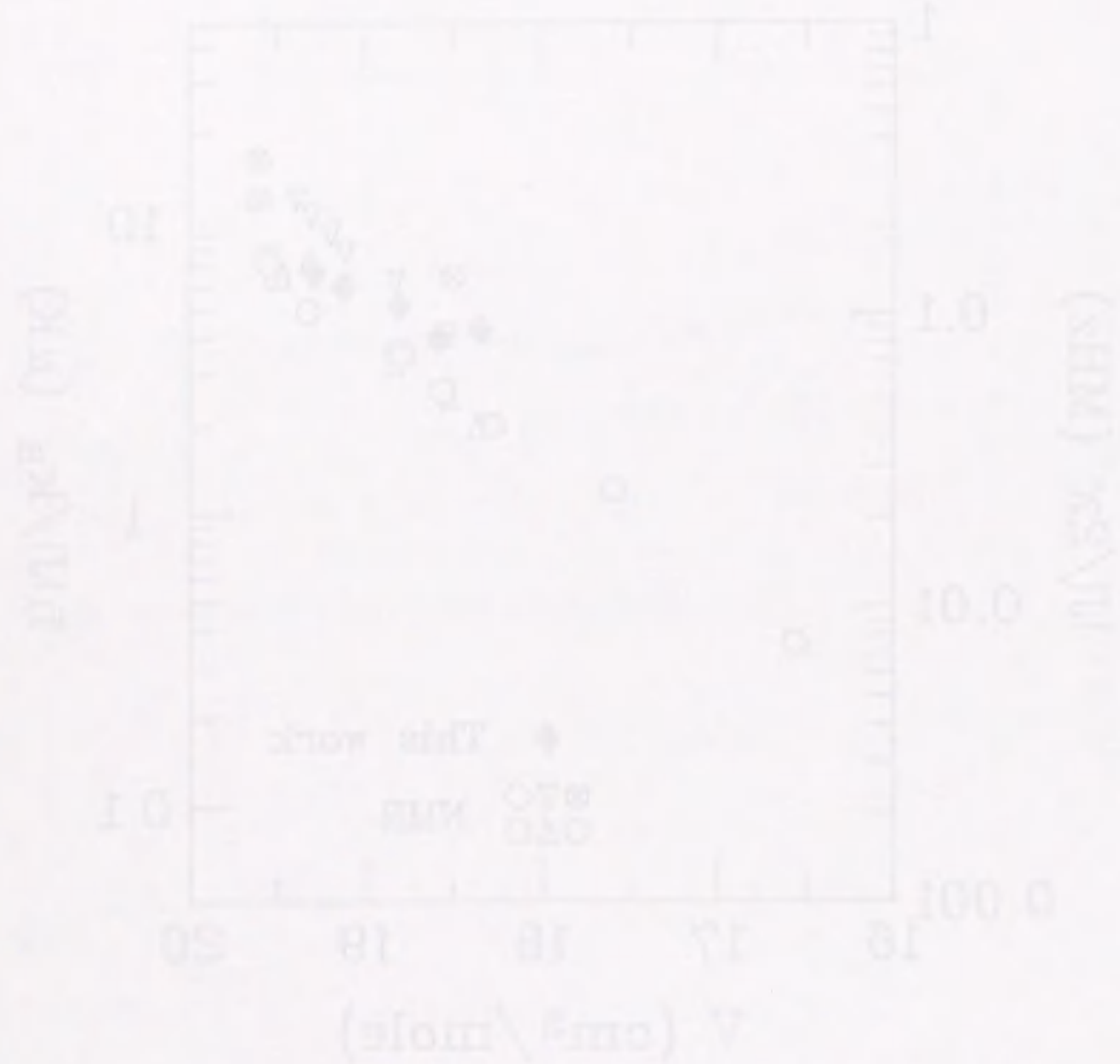


Fig. 7-7

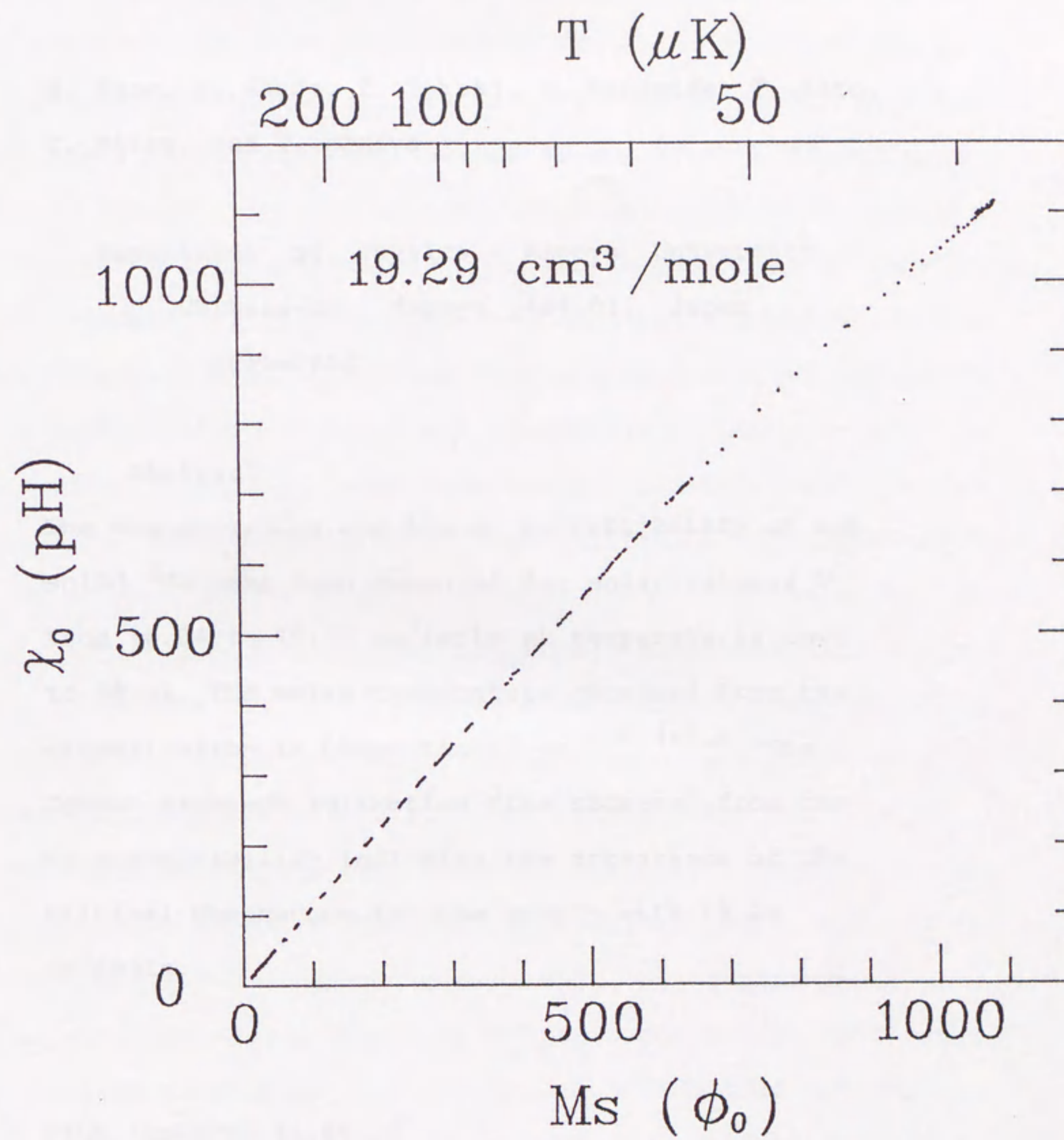


Fig. 7-8

