超流動 ³He-A におけるカイラルドメイン構造の可視化 Visualization of chiral domain structure of superfluid ³He-A

> 笠井 純 Kasai Jun 2018 年 10 月 11 日

Abstract

This thesis reports the first observation of chiral domain walls, which appear between domains with opposite chirality in superfluid ³He-A known as a chiral superfluid.

Superfluid ³He is regarded as a topological superfluid. ³He-A is a kind of chiral superfluid in which the time-reversal symmetry is spontaneously broken. In a container with a thin slab geometry, the chirality \hat{l} of ³He-A, which represents the direction of the orbital angular momenta of Cooper pairs in ³He-A, should be oriented perpendicular to the wall uniformly. In this situation, there should be a spontaneous mass flow called *edge current* at the edge of the slab (or near a chiral domain wall). However researchers have never observed such chiral edge current directly even in a chiral superconductor for example Sr_2RuO_4 or UPt₃. Thus, magnitude of the edge current is still an important problem. Furthermore, in spite of their efforts, a chiral domain wall have also never been observed.

The nuclear magnetic resonance (NMR) measurement has been important for the study of superfluid ³He. NMR resonance frequency of superfluid ³He contains the information of the dipole-dipole interaction between atoms of a Cooper pair. In the first place, because nonlinear phenomena of NMR signals represent the characteristics of the order parameter, the NMR experiments verified the symmetries of the triplet p-wave superfluid ³He. It is also powerful to study topological defects. Resonance frequencies from a topological defect and bulk liquid are different. If there is a topological defect such as a quantum vortex, a satellite peak appears beside the main peak in NMR signal. Difference of frequencies between the main and satellite peaks gives a signature of the topological defect. We can confirm the order parameter structure of the defects from a comparison with theoretical analyses with high accuracy. This comparison succeeded well in studies of quantum vortices performed with a rotational refrigerator. NMR measurements have been indispensable to study superfluid 3 He. At the same time, more and more powerful techniques of NMR have been required and developed. In fact, the results of this thesis work are based on our breakthrough in the NMR technique.

We utilized the magnetic resonance imaging (MRI) technique, which is used in medical equipment. For this technique, NMR is performed under a spatially varying magnetic field. In this way we can obtain spatial distributions of atoms. We optimized the MRI method for ultra low temperature with further evolution. The newly developed method is Ultra-Low-Temperature Magnetic-Resonance-Spectroscopic Imaging (ult-MRSI). In MRSI measurement, we apply static magnetic field gradient $\mathbf{G} = \delta H_z / \delta \mathbf{r}$ superimposed to a uniform magnetic field. Then we perform pulsed-NMR measurement with a small tipping pulse and obtain a free-induction-decay (FID) signal. We repeat the same pulsed-NMR operation with every directions and intensities of the field gradient. After that, by Fourier-transforming a large amount of data, we can obtain not only spatial distribution of spins, but also distribution in resonance frequency. In other words, we can observe the so called local NMR spectra of samples. This quite powerful method makes it possible that spatial distribution of topological defects is visualized directly.

We installed liquid ³He in a gapped parallel-plate cell of 0.1-mm gap, 2.0-mm height, and 14-mm length. The liquid was pressurized to 2.8 MPa, and the superfluid phase transition to the A-phase occurred at 2.41 mK under a magnetic field of 140 mT. The magnetic field H was applied in parallel with the plates, then the ground state should be an uniform texture of $\hat{l} \parallel \hat{d} \perp H$. The vector \hat{d} represents a anisotropic axis of spins. Through previous experiments, it is well known that a magnetic planar defect called a composite soliton appears concurrently with the phase transition to the A-phase. We also discovered naturally created planar defects (solitons) in the slab-shaped ³He-A. By using our MRI method, we succeeded in visualizing distribution of these topological defects for the first time in the world. Moreover, unlike the composite soliton, these planar defects do not produce any satellite peak in NMR spectra. This means that the dipolar energy is almost minimized even within the soliton. Such a non-magnetic defect has never been observed explicitly. Actually, it cannot be observed by the conventional NMR method because the method integrate all NMR signals from the whole experimental area. In addition, our new ult-MRSI measurements revealed that this unconventional soliton broadens the NMR resonance peak no less than 2 times. This implies that the relaxation of magnetic excitations become faster by the same ratio near the soliton than at the ground state.

In order to identify order parameter structure of the soliton, we theoretically simulated textures of topological defects. The simulation was performed in a two-dimensional space. At first, we put a texture which has a topology of a particular defect as the initial situation. And all

of local vectors \hat{d} and \hat{l} were rotated with a small angle to the direction which makes the local free energy become smaller. By repeating this rotation many times, the texture falls in a metastable situation whose topology is the same as the initial situation. After the simulation of texture, we also simulated NMR response as standing spin waves in a dipole potential determined by the texture. The standing spin waves are derived as eigenfunctions of Schrödinger-like equation with a dipole potential, and the eigenvalues of energy represent the resonance frequencies of each modes. By these simulations, we identified the soliton we experimentally observed as the structure in which the dipole energy is minimized, the so-called dipole-locked situation. Therefore we named this *Dipole-Locked Soliton* (DLS). In DLS, the vectors \hat{l} and \hat{d} remain parallel with each other when they rotate in space. And they orient in opposite direction on each side of DLS. Because the chirality \hat{l} turns to opposite direction with going through a DLS, we can regard it as a chiral domain wall. This work marks the first direct observation of distribution of chiral domain walls in chiral superfluid/superconductors.

This soliton is not stable in bulk liquid. Because it has no energy reduction which competes with the gradient energy. It spreads infinitely and disappears. Also one can say that the DLS has topological charge number of zero, the same as the ground state. It is stabilized only inside of a container by singularities pinned on its surface. DLS has never been observed and we are aware of no report mentioning DLS in the past. It is very interesting such an unexpected defects appeared on every cooling of our experiments. It means that chiral multi-domain structures tend to appear more frequently than single-domain texture.

The number and position of solitons which we observed varied on each independent cooling. Surprisingly, a DLS of curved shape was considerably stable at 2.0 mK. Such a soliton often appeared after a rapid cooling through $T_c = 2.41$ mK. Because a planar defect causes the energy loss originating from surface tension, it should be flat in bulk situation. Therefore, in order to stabilize winding solitons, there must be a quite strong pinning force at the surface of the container. We observed, moreover, that the pinning force became weaker at higher temperature. While we kept it at $T \approx 0.98T_c$, NMR measurement showed solitons moved and annihilated. After such an *annealing* process, we never found winding solitons. この論文はカイラル超流動体として知られる³He-A 相において、異なるカイラリティを持ったドメイン間に生じるカイラルドメインウォールを観測し、その形状を可視化したことを報告するものである。

超流動 ³He はトポロジカル超流動体であると言われることがある。 ³He-A は自発的に時間反転対称性が破れた系であり、特にパリティ対称 性との組み合わせであるカイラル対称性が破れているため、カイラル超 流動体と呼ばれる。カイラル超流動体である ³He-A は、そのカイラリ ティを示す \hat{l} (軌道角運動量の方向を示す)が一方向に揃う(二次元的 な) slab 状の空間に閉じ込めた場合、その境界において edge curent と呼 ばれる mass flow が自発的に生じると考えられる。これは ³He-A が持つ 巨視的軌道角運動量の発露である。しかしながら未だに観測に成功した 例はなく、その大きさはカイラル超流動体・超伝導体における未解決の 一大命題である。edge current はカイラリティの反転した 2 領域の境界 である chiral domain wall においても生じるため、その探索も長らく行 われているが、やはり観測された例はない。³He-A とよく似たカイラル 超伝導体であると考えられている Sr₂RuO₄ や UPt₃ においても同様で、 明快な観測は未だ提示されていない。

超流動³He の研究においては、これまで NMR 測定が極めて重要な役 割を果たしてきた。液体 ³He の NMR 共鳴周波数は、超流動状態に転移 することによって Cooper 対間の磁気双極子相互作用が生じ、微妙に変 化する。つまり常流動状態での周波数からのシフト量を観測することで 双極子相互作用の大きさがわかる。他にもパルス NMR における tip 角 に依存した非線形な振る舞いなどもオーダーパラメータの表式から導く ことが可能なため、そもそも p 波三重項状態であることや A 相 ·B 相の 対称性の特定に関して決定的な証拠を与えた。NMR は位相欠陥の研究 においてもやはり重要である。共鳴周波数が双極子相互作用に依存する ことで、位相欠陥の近傍とその周囲のバルク部から生じる信号が区別で きるからである。しかも超流動³He は理論と実験が非常に精度良く一致 している類まれな系であるため、オーダーパラメータの詳細な構造まで その周波数の差異から特定することが可能である。理論的に求められた 共鳴周波数と実験結果を比較する手法は、特に回転冷凍機を用いた量子 渦の研究において大きな成功を収めた。NMR 測定は超流動³He の研究 に関して無くてはならない存在であるが、既に技術としては十分成熟し た手法であるため、次なるブレイクスルーが待ち望まれていた。

我々が着目したのは核磁気共鳴法(NMR)の応用である MRI であ る。主に医療の分野で実用化され広く利用されている技術であるが、強 さが空間変化する磁場を用いて NMR 測定を行うことで、スピンの空間 分布を得ることができる。これを超低温の超低温 ³He に対して用いるこ とができるように最適化した上でさらに大きく発展させ、NMR のエネ ルギー分解能と MRI の空間分解能を併せ持つ手法を開発し、超低温核 磁気共鳴分光映像化法 (Ultra-Low-Temperature Magnetic-Resonanse-Spectroscopic-Imaging)、ult-MRSI と名付け実用化した。ult-MRSI で は、定常磁場勾配 $G = \delta H_z / \delta r$ を印加した状態で小角励起のパルス NMR を行い、Free-Induction-Decay (FID)の信号を測定する。これを G をあらゆる大きさ、方向へ掃引しながら繰り返し、得られた膨大な データを Fourier 変換を始めとした計算を繰り返すことで解析する。こ れによって信号の空間と周波数に関した分布 $\rho(r,\omega)$ 、言い換えれば局所 的な NMR スペクトルを測定することができる。この測定方法を用いれ ば、NMR の周波数シフトが示す位相欠陥の存在を空間的に可視化でき る。つまりその空間構造や分布の様子を直接的に示すことができると期 待される。

今回我々はギャップ 100 μm、高さ 2 mm、長さ 14 mm の平行平板中 に閉じ込めた slab 状の³He-A の内部に生じる位相欠陥について実験を 行った。平板に平行な方向に磁場を印加するため、平板(つまり磁場) に垂直な方向に軌道角運動量 \hat{l} 、及びスピンの異方軸を表す \hat{d} が揃った 均一な状態が基底状態となると期待される。容器の構造に関わらず、液 体 ³He を T_{c} を越えて冷却し A 相に転移させた場合、composite soliton と呼ばれるある種の面状位相欠陥が自然に発生することが、これまでの 研究によって知られている。実際我々も、ult-NMR/MRI 測定によって、 自然発生した面状欠陥を発見し、その空間分布を可視化することに成功 した。これは世界初の成果である。またその分布は、独立な冷却の度に 毎回個数、位置ともにランダムに生じることを確認した。しかも比較的 急速に(~4 μ K/min) $T_{\rm c} = 2.41$ mK を通過した場合、2.0 mK では驚 くべきことに曲がりくねった形状の面欠陥がかなり安定に存在していた。 面状の位相欠陥が存在すると、その面積に比例した自由エネルギーの 損失が存在する。言い換えれば表面張力が働くため、当然なるべく面積 を小さくする力が働く。完全に消滅するためには面の片側のドメインの オーダーパラメータを全て反転させる必要があるため、準安定に存在は しても平面となることが予想された。それにも関わらず大きく曲がりく ねった欠陥が存在するということは、今回用いたエポキシ製の容器の壁 において非常に強いピン留め効果があるということを示している。また、 $T/T_{\rm c} = 0.98$ のような $T_{\rm c}$ 直下ではピン留めが緩み、面欠陥が移動する様 子も観測された。この anneal 操作を行った後の texture では、曲がった 形状の欠陥は観察されず、やはり平面が安定なことを裏付けている。さ らに、anneal 中に移動した2枚の面欠陥が衝突して対消滅する様子も観 測した。

我々が観測し、可視化に成功した面欠陥は、これまでに確認されてい た composite soliton とは異なり、NMR スペクトルにサテライト信号 を生じなかった。つまりバルクとほとんど同じ周波数で共鳴していると いうことで、それは Cooper 対間の磁気双極子による自由エネルギーが バルクと同じく最小化されていることを示している。そのような欠陥は これまでに明快に観測された例はなかった。そもそも従来の NMR 測定 では、実験領域全体の NMR 共鳴を積分して測定することになるのでサ テライトを生じない位相欠陥は観測不可能なのである。新たに開発した ult-MRSI 測定によって、面欠陥の存在する部分での局所的な NMR スペ クトルは、共鳴の中心周波数こそ周囲のバルクと変わらないものの、線幅 が少なくとも 2 倍以上に広がっていることがわかった。すなわち NMR による磁気的な励起が、それだけ早く緩和しているということである。

このような NMR 的性質を持つ面状位相欠陥が、オーダーパラメータ でどのような構造を持っているものであるか特定するために、理論的な simulation を行った。磁場方向への並進対称性を仮定した2次元空間を 仮定し、はじめに初期条件として考えうる texture を一つ与える。それを 各種の自由エネルギーの総和が極小になるように少しずつ texture を変 化させ、最終的に落ち着く texture を調べるという計算法を採用した。こ れは最初に与えた topology を大きく変えるような変化は起きないが、基 底状態ではない準安定な欠陥も計算できるという長所がある。この計算 によって考えうるあらゆる texture の、準安定な構造を求め、その場合に NMR 測定して観測される NMR 周波数を、やはり simulation で求めた。 これは、与えられた texture が形成する dipole potential と呼ばれるス ピンの運動に関する potetial から、その中で定在波として安定化するス ピン運動、スピン波を計算するものである。これらの数値計算によって、 実験結果を説明できる唯一の欠陥構造を特定した。それは磁気双極子相 互作用を最小化する、dipole-lock という条件を満たした状態でl,d が 同時に空間的に反転するドメインウォール構造であり、"Dipole-Locked Soliton (DLS)"と名付けた。その両側ではカイラリティを表すlが反転 している、カイラルドメインウォールとなっている。このようなカイラ ルドメインウォールは、カイラル超流動・超伝導において探索が行われ てきたが、その発見は本論文の結果が初めてである。

DLS はバルクでは不安定である。勾配エネルギーと拮抗する自由エネ ルギーがないため、どこまでも拡散してしまうからである。もしくはト ポロジカルな巻き数がゼロであって基底状態と同じであるため、連続的 に変形して均一な texture になるということもできる。容器の内部にあ る場合のみ、その表面にピン留めされた singularity によって安定化され る構造である。この構造は今まで観測されたことが無いだけでなく、バ ルクで存在しないため理論的にも深く考慮されたことがほとんどない。 予想外な欠陥である DLS が、しかし実験的には冷却するたびに必ず生成 してかなり安定に存在していた。DLS を伴わない uniform な texture は 一度も観測できなかった。

目次

1		Introduction	10
	1.1	$^{3}\mathrm{He}$	10
	1.2	topological defects	11
	1.3	MRI	13
2		Superfluid ³ He	14
	2.1	Order parameter	14
	2.1.	1 unitary state	15
	2.1.	2 p-wave pairing	15
	2.2	chiral superfluid ³ He-A	20
	2.2.	1 Chirality	20
	2.2.	2 Free energies	20
	2.2.	3 Texture	24
	2.2.	4 Topological defects	26
	2.2.	5 Composite soliton	26
	2.2.	6 NMR response	27
	2.3	Preceding Studies	31
	2.3.	1 Experimental Studies of Solitons in Superfluid ³ He-A	31
	2.3.	2 Observation of Intrinsic Magnus Force and Direct Detection of Chirality in	
		Superfluid ³ He-A	34
	2.3.	3 Intrinsic Pinning of Vorticity by Domain Walls of \hat{l} Texture in Superfluid ³ He-A $\stackrel{\circ}{\to}$	38
	2.3.	4 remaining problem	42
3		NMR measurement	44
	3.1	pulsed-NMR	44
	3.1.	1 Bloch equations	44
	3.1.	2 FID	45
	3.2	Phase Sensitive Detection	45
	3.3	MRI	46
	3.4	MRSI	47
4		Data analysis	48
	4.1	Fourier transformation	48
	4.2	Nyquist frequency	49
	4.3	Discrete Fourier transformation	49
	4.4	Fourier transformation of FID	50
	4.5	Adjustment of NMR signal	53
	4.5.	1 Adjustment of Receiver	53
	4.5.	.2 Sampling by Δ	53
	4.5.	3 Phase adjustment of signal	54

4.6	Analysis in imaging	54
4.7	Analysis for 2D–MRI	55
4.8	Analysis for 2+1D–MRSI	56
5	Experiments and Results	59
5.1	Experimental Devices	59
5.1	.1 Refrigerator	59
5.1	.2 sample cell	59
5.1	.3 NMR coils	63
5.1	.4 Superconducting magnets for MRI	64
5.1	.5 NMR equipments	65
5.1	.6 Temperature control of nuclear stage	66
5.2	Experiment in normal liquid ³ He	68
5.2	.1 Optimization of gradient magnets	68
5.2	.2 Excitation pulse	71
5.2	.3 MRI measurement	73
5.2	.4 MRSI measurement	76
5.3	Experiment in superfluid ³ He-A	78
5.3	.1 MRSI measurement	82
5.3	.2 Annealing effect	88
5.3	.3 Change of texture by large excitation pulses	95
5.3	.3 Change of texture by large excitation pulses	95
5.3 6	.3 Change of texture by large excitation pulses	95 99
5.3 6 6.1	.3 Change of texture by large excitation pulses	95 99 99
5.3 6 6.1 6.1	.3 Change of texture by large excitation pulses	95 99 99 99
5.3 6 6.1 6.1 6.1	.3 Change of texture by large excitation pulses Simulation Simulation of texture .1 Numerical parameters .2 Setting of simulation space	95 99 99 99 100
5.3 6 6.1 6.1 6.1 6.1	.3 Change of texture by large excitation pulses Simulation Simulation of texture .1 Numerical parameters .2 Setting of simulation space .3 Prohibition of loss-less inversion of \hat{m} and \hat{n}	 95 99 99 99 100 101
5.3 6 6.1 6.1 6.1 6.1 6.1	.3 Change of texture by large excitation pulses Simulation Simulation of texture .1 Numerical parameters .2 Setting of simulation space .3 Prohibition of loss-less inversion of \hat{m} and \hat{n} .4 Example of simulation	 95 99 99 99 100 101 101
5.3 6 6.1 6.1 6.1 6.1 6.2	.3 Change of texture by large excitation pulses Simulation Simulation of texture .1 Numerical parameters .2 Setting of simulation space .3 Prohibition of loss-less inversion of \hat{m} and \hat{n} .4 Example of simulation .4 Example of simulation	 95 99 99 100 101 101 103
5.3 6 6.1 6.1 6.1 6.1 6.1 6.2 6.3	.3 Change of texture by large excitation pulses	 95 99 99 100 101 101 103 105
5.3 6 6.1 6.1 6.1 6.1 6.1 6.2 6.3 6.4	.3 Change of texture by large excitation pulses	 95 99 99 100 101 101 103 105 108
5.3 6 6.1 6.1 6.1 6.1 6.2 6.3 6.4 6.5	.3 Change of texture by large excitation pulses Simulation Simulation of texture .1 Numerical parameters .2 Setting of simulation space .3 Prohibition of loss-less inversion of \hat{m} and \hat{n} .4 Example of simulation .2 Calculation of spin waves in dipole potential .4 Example of simulation .5 Dipole-Locked Soliton	 95 99 99 100 101 101 103 105 108 111
5.3 6 6.1 6.1 6.1 6.1 6.1 6.2 6.3 6.4 6.5 6.6	.3 Change of texture by large excitation pulses Simulation Simulation of texture .1 Numerical parameters .2 Setting of simulation space .3 Prohibition of loss-less inversion of \hat{m} and \hat{n} .4 Example of simulation .2 Calculation of spin waves in dipole potential .4 Example of simulation .5 Dipole-Locked Soliton .1 Dipole-locked structures	 95 99 99 90 100 101 101 103 105 108 111 115
5.3 6 6.1 6.1 6.1 6.1 6.1 6.2 6.3 6.4 6.5 6.6 7	.3 Change of texture by large excitation pulses Simulation Simulation of texture .1 Numerical parameters .2 Setting of simulation space .3 Prohibition of loss-less inversion of \hat{m} and \hat{n} .4 Example of simulation .2 Calculation of spin waves in dipole potential .4 Example of simulation .5 Calculation for Composite Soliton .1 Lisoliton .2 Setting of simulation .4 Example of simulation .5 Other dipole-locked soliton .5 Discussion	 95 99 99 90 100 101 103 105 108 111 115 123
5.3 6 6.1 6.1 6.1 6.1 6.2 6.3 6.4 6.5 6.6 7 7.1	.3 Change of texture by large excitation pulses Simulation Simulation of texture .1 Numerical parameters .2 Setting of simulation space .3 Prohibition of loss-less inversion of \hat{m} and \hat{n} .4 Example of simulation .2 Calculation of spin waves in dipole potential .4 Example of simulation .5 Calculation for Composite Soliton .1 Locked Soliton .5 Other dipole-locked structures Discussion Spin Dynamics in Pulsed-NMR	 95 99 99 90 100 101 103 105 108 111 115 123 123
5.3 6 6.1 6.1 6.1 6.1 6.2 6.3 6.4 6.5 6.6 7 7.1 7.2	.3 Change of texture by large excitation pulses Simulation Simulation of texture .1 Numerical parameters .2 Setting of simulation space .3 Prohibition of loss-less inversion of \hat{m} and \hat{n} .4 Example of simulation .4 Example of simulation .5 Calculation for Composite Soliton .1 Soliton .5 Dipole-Locked Soliton .5 Discussion Spin Dynamics in Pulsed-NMR NMR signal from solitons	 95 99 99 90 100 101 103 105 108 111 115 123 127
5.3 6 6.1 6.1 6.1 6.1 6.2 6.3 6.4 6.5 6.6 7 7.1 7.2 7.3	.3 Change of texture by large excitation pulses Simulation Simulation of texture .1 Numerical parameters .2 Setting of simulation space .3 Prohibition of loss-less inversion of \hat{m} and \hat{n} .4 Example of simulation .2 Calculation of spin waves in dipole potential .4 Example of simulation .5 Calculation for Composite Soliton .1 Dipole-Locked Soliton .1 Discussion Spin Dynamics in Pulsed-NMR NMR signal from solitons Chiral Domain Structure	 95 99 99 99 100 101 103 105 108 111 115 123 123 127 133
5.3 6 6.1 6.1 6.1 6.1 6.2 6.3 6.4 6.5 6.6 7 7.1 7.2 7.3 7.4	.3 Change of texture by large excitation pulses	 95 99 99 99 100 101 103 105 108 111 115 123 123 127 133 134
5.3 6 6.1 6.1 6.1 6.2 6.3 6.4 6.5 6.6 7 7.1 7.2 7.3 7.4 8	.3 Change of texture by large excitation pulses .1 Numerical parameters .1 Numerical parameters .2 Setting of simulation space .3 Prohibition of loss-less inversion of \hat{m} and \hat{n} .4 Example of simulation .2 Calculation of spin waves in dipole potential .4 Example of simulation .5 Calculation for Composite Soliton .1 Lisoliton .5 Dipole-Locked Soliton .5 Dipole-Locked Soliton .5 Discussion Spin Dynamics in Pulsed-NMR NMR signal from solitons .5 Chiral Domain Structure .5 Soliton Density	 95 99 99 99 100 101 103 105 108 111 115 123 127 133 127 133 134 137

1 Introduction

1.1 ³He

元素としてのヘリウムには、安定な同位体が2種類存在する。陽子2個、中性子2個、電子2個からなる原子量4でbosonのヘリウム4(⁴He)と、中性子が一つ少なくfermionのヘリウム3(³He)である。自然に存在するヘリウムは、放射性元素の α 崩壊で生じる⁴He がほとんどであり、地球の大気中での³He の存在比は1ppm 程度に過ぎない[1]。そのため、西暦 1908 年には Kamerlingh Onnes によって液化された⁴He とは異なり、³He は手にいれることすら困難であった。第二次世界大戦後に核開発が加速すると、

$$\dot{g}\mathrm{Li} + {}^{1}_{0}\mathrm{n} \to {}^{3}_{1}\mathrm{H} + {}^{4}_{2}\alpha \tag{1.1}$$

の核反応により生成した三重水素が半減期12.5年で、

$${}^{3}_{1}\text{H} \to {}^{3}_{2}\text{He}^{+} + e^{-} + \bar{\nu}_{e}$$
 (1.2)

という崩壊を起こし ³He ができるようになり、ようやくまとまった量の ³He が手に入るように なった。

その後冷却技術と共に液体・固体 ³He の研究は発展し、1960 年代の希釈冷凍機の開発及び ³He の融解圧曲線の性質を利用した Pomeranchuk 冷却を用いて、ついに 1972 年 D. D. Osheroff, R. C. Richardson, D. M. Lee によって液体 ³He の超流動相への転移が発見された。彼らはこの功績に よって 1996 年のノーベル物理学賞を受賞している。

その後十年にも満たない間に世界中で数多の実験的・理論的な研究が行われ、超流動³He の数多 くの詳細な性質が明らかにされた。

これほどまでに素早く研究が進んだ最大の理由としては、その再現性の高さが挙げられる。という のも、極低温の液体³He にはあらゆる不純物・格子欠陥が存在しないからである。ここが僅かな組 成比や不純物、単結晶の大きさなどに悩まされる超伝導体などとは一線を画す超流動³He 研究の有 利な点である。

³He は fermion であるため、⁴He と異なりシンプルな Bose-Einstein 凝縮で超流動となることが できない。つまり BCS 理論で説明される超伝導体中の電子と同様、2 個の原子 (正確には準粒子) が Cooper 対を形成することによって超流動となる。ところで超流動 ³He の性質の中で最も興味深い 物理の根源となっているものは、その内部自由度の大きさである。すなわち、その Cooper 対が従来 型超伝導体とは異なり spin 三重項軌道 p 波の対を組む。つまり spin 角運動量 S と軌道角運動量 Iがともに 1 の大きさを持つため、+1,0,-1 の三状態を取り得る。このことから超流動の秩序変数が 3×3 成分あり、それぞれ複素数の振幅を持つので計 18 の自由度を持つと言われる。

超流動 ³He ではこの大きな自由度に起因して、理論的に熱平衡状態として polar 相、planar 相、 BW(Balian-Werthamar) 相、ABM(Anderson-Brinkman-Morel) 相のように多数の異なる対称性を 持つ秩序相が考えられる。実験的には温度、圧力、磁場に対する相図がすぐに決定され、A 相、B 相、 A₁ 相と呼ばれる 3 つの相がバルクで安定に存在することがよく知られている。A 相は ABM 状態、 B 相は BW 状態で記述され、A₁ 相は ABM 状態のうち \uparrow のクーパー対のみが凝縮している状態で ある。

各超流動相での対称性を決定する際には、NMR 測定が大きな役割を担った。超流動転移を起こ すことによって³He 原子がクーパー対を作るため、ペア間での磁気双極子相互作用が特定の大き さで残るようになる。そのため、NMR の共鳴周波数が磁場に比例した Larmor 周波数 γH (γ は gyromagnetic ratio、H は磁場の大きさ)からシフトする(周波数シフト)。その振る舞い、特にパル ス NMR の tip 角に依存してシフトの大きさが変化するなどの非線形効果が、理論的予測と完全に一 致したことなどが決め手となって、超流動 ³He は p 波超流動体と確認された。

なお、このような非線形効果に加え、スピン状態が非一様な場合にはすぐに速い spin supercurrent が流れたりといった現象も起きるため、超流動³He に対する NMR 応答の解釈は一般には極めて複 雑になるが、このような効果は、非常にシンプルな測定法である小 tip 角パルスによる FID を観測 することで影響を減らすことができ、理論的に単純なモデルで理解できる。

超流動 ³He の量子凝縮相では通常の液体状態が持っている対称性のうちいくつかが自発的に破れ ている。すなわち、軌道・スピンそれぞれの空間回転対称性やゲージ対称性などである。例えば B 相 (BW 状態) では Cooper 対の軌道とスピンの角運動量の相対方向が固定されており、回転対称性 の一部が特殊な形で破れていることになる。このような破れた対称性は、各相でのオーダーパラメー タの内部自由度として表されている。

超流動 ³He-A 相のオーダーパラメータの内部自由度は、 \hat{d} 及び \hat{l} という 2 つの単位ベクトルで特 徴づけられる。 \hat{d} はスピン空間での異方性を表すベクトル、 \hat{l} は軌道空間での異方性を表すベクトル である。A 相では全てのクーパー対が同じ方向に揃ったマクロな軌道角運動量を持っていて、この \hat{l} はその方向と一致している。すなわち、³He-A では時間反転対称性が破れていることを意味する。 より正確に言えば、時間反転対称性とパリティ対称性の組み合わせである「カイラル対称性」が自発 的に破れている。このことから、超流動 ³He-A はカイラル超流動体と呼ばれる。カイラル対称性が 破れることによって ³He-A が持つカイラリティの存在は Walmsley *et al.*(2004, [2]) や Ikegami *et al.*(2013, [3]) によって確認されている。

1.2 topological defects

巨視的量子状態である超流動体・超伝導体のオーダーパラメータは、空間的に均一であるとは限ら ず、特徴的な空間構造を持つことがある。最もシンプルな例としては超流動⁴He に生じる量子渦が 挙げられる。これは渦の周りに一周するときに波動関数の位相の変化が 2π の倍数になるような渦で ある。その中心ではどうしても位相の辻褄が合わなくなるので波動関数が潰れた "*hard-core*" な渦芯 が存在する。超流動 ³He においても量子渦がありえるが、そのオーダーパラメータがはるかに複雑 なため、より複雑で多様な量子渦が存在することがわかっている。例えば、A 相 ·B 相のいずれにお いても、hard-core な渦芯のない non-singular (continue) な渦が考えられる。B 相では doule-core vortex や A-phase core vortex [4–7]、A 相では continuous unlocked vortex (CUV、後述) などが 特定されている。

また超流動³He のようにオーダーパラメータに大きな内部自由度がある場合、外部条件を考慮し ても(しばしば離散的な)複数の基底状態が存在することが多い。一般に離散的な2つ(以上)の基 底状態が考えられ、しかも空間的に離れた領域で共存する場合、それぞれが実現した領域の間にその 2つをつなぐため比較的緩やかに変化する部分が存在しなくてはならない。このような構造は領域壁 (ドメインウォール)と呼ばれ、強磁性体の磁区構造に出現する磁壁のアナロジーであると言える。特 に超流動³He のオーダーパラメータはその自由度がベクトル量で表現されるため、そのドメイン構 造は磁化の方向による磁区の概念の量子的なアナロジーとして強い類似性があると言える。

超流動³Heにおける非一様なオーダーパラメータの空間分布を、(ある種のベクトル量の向きが空間変化することから)液晶とのアナロジーで織目構造(texture)と呼ぶ。ドメインウォールや量子

渦のような構造は、結晶の格子欠陥のように一見存在するとエネルギー的に損であるが、境界条件や 外部からの影響によって基底状態となることがある。このような局所的に特異な構造をした texture を topological defects (位相欠陥)と呼ぶ。位相欠陥は何らかの理由により励起状態として発生した 場合であっても、消滅せず準安定に存在し続ける場合が多くある。それは消滅させようとすると却っ て大きな potential barrier を越える必要があるからであると理解されている。

このような位相欠陥に関する研究にも、NMR は有用である。超流動 ³He に量子渦などの欠陥が 存在すると、一般にその周囲での磁気双極子相互作用は基底状態にバルクのおけるそれと異なる。そ のため周波数シフトが、欠陥のないバルク部とずれるため、NMR 信号にサテライトピークが現れ る。NMR サテライトピークは、Avenel *et al.* (1975) が NMR 縦共鳴で発見した [8]。これは自然 に冷却して転移させた際に生成したものであった。すぐに Gould *et al.* (1976) が横共鳴でも発見し た [9]。Maki *et al.* (1976) がサテライトピークを生ずる原因としてドメインウォール様の面欠陥で ある d-soliton を提案した [10]。これは uniform な \hat{l} -texture の中で \hat{d} が反転するもので、その空間 変化を表す方程式が数学的に soliton 方程式となっていたため soliton と呼んだ。その後すぐに、バ ルクでは \hat{d} のみが空間変化する d-soliton よりも、 \hat{l} も同時に逆方向に変化して相対角が π 回転する composite soliton の方が安定であることがわかった (Maki *et al.*,1977-1979) [11–13]。Gould *et al.* (1980) は、composite soliton に対してパルス NMR による詳細な研究を行った [14]。特に tipping angle が $\pi/2$ を超えるような大きな NMR パルスを撃ち込むことによって磁気的に擾乱を与えると、 \hat{d} ベクトルが反転して d-soliton が生成するが、すぐにより安定な composite soliton に変化するこ とを確認した。

その後は、回転冷凍機によって量子渦を発生させる研究も盛んに行われた。Seppälä *et al.*(1983) が singular な vortex core を含まない 2 価の量子渦である Contineum Unlocked Vortex (CUV) を 発見した [15,16]。これは近年では Vortex-Skyrmion と呼ばれることもあるが、超流動 ³He オーダー パラメータの自由度の高さを活かして滑らかな変化だけで構成されており、超流動 ⁴He における量 子渦と異なり hard-core な singularity が存在しない。それ以外にも回転速度や外部磁場などの条件 によって、異なる構造の様々な種類の渦が安定に存在しうることが確認され、相図も作成されてい る [17–19]。このような位相欠陥による NMR 周波数の変化は、そのオーダーパラメータの構造によ り異なる。実験で観測された NMR 周波数と理論的な解析によるある構造の周囲で励起されるスピ ン波の周波数を比較することで構造を特定することができるのである。

また超流動 ³He の位相欠陥に関連した最近の研究としては、半整数量子渦(Half Quantum vortices, HQV)が発見された。A 相の特殊な対称性によって生じることが理論的に予言されていた [20] HQV は、長らく探索が続けられていたが A 相ではまだ発見されていない。しかし、多孔質 物質 Aerogel、特に極めて異方性が強いものの中で実現が確認された polar 相 [21,22] (オーダーパ ラメータが A 相と似ている)において発見された(Autti *et al.*,2016 [23])。

超流動ヘリウム中に生じる位相欠陥は、物理学の他分野とも関連している。特に、初期宇宙にお ける対称性の自発的破れに伴って発生したとされる cosmic string の生成過程とのアナロジーは、 Kibble-Zurek のモデルとして注目されている [24,25]。ヘリウム 3 が T_c を通過して超流動転移する 際に起きる自発的な対称性の破れによって位相欠陥が生成するという現象は、初期宇宙の相転移と本 質的には全く同じであり、極めてクリーンな系である ³He は、初期宇宙相転移の模擬実験の場とし て非常に有力である。Bäuerle *et al.* 及び Ruutu *et al.* は ³He に中性子を吸収させて瞬間的に温度 を上げ、その後急冷された場合に発生する量子渦の密度を調べる実験を行った [26,27]。

1.3 MRI

単純な NMR 測定は、実験範囲の信号を全て積算された形で観測されるため、サテライト信号の 存在によって位相欠陥が存在することは確認できても、その空間的な分布などは判別できない。位 相欠陥の生成・消滅過程や密度分布、pinning の安定性など多様な研究を行う上では、このような 欠陥の空間配置が直接観測できると圧倒的に有利である。そのため我々は磁場勾配下での NMR 測 定を利用した核磁気共鳴映像化法(MRI)を超低温の³He に対して用いる ULT-MRI(Ultra Low Temperature Magnetic Resonance Imaging)測定を行う技術を開発してきた [28–31]。MRI は根 本的には磁化の空間密度を観測する手法であるが、特に超流動 ³He においては NMR 測定における 諸性質(緩和や周波数シフト等)の影響を受け、観測されたデータの解釈が難解になることがある。

そこで我々は、さらに強力な測定手法である ULT-MRSI 法を新開発した(S は Spectroscopic の 意味である)。MRSI を用いれば空間と周波数の情報を独立に得られる。いうなれば局所的な NMR スペクトルを観測できる、世界唯一の技術である。これは NMR の共鳴が位置によって変動する超 流動 ³He の位相欠陥の研究に最適な測定手法であると言える。その空間的な構造がわかるというこ とで、2 つ以上の欠陥の相互作用や消滅過程などの解明に大きく寄与することが期待される。今回、 MRSI 法を適用する初めての実験として、そのアドバンテージを最大に活かし、世界で初めて ³He-A における具体的なカイラルドメイン構造を観測することに成功した。本論文では、その成果について 詳細に報告する。

2 Superfluid ³He

バルクの超流動³He は磁場、圧力、温度により異なる性質を持つ3つの熱平衡相が実現する。ゼロ 磁場下では、高温高圧の一部がA相と呼ばれる相であり、残りの大部分はB相である。これが図2.1 に示す相図のように磁場下ではA相が拡がり、またT_cの極近傍にA₁相と呼ばれる相が出現する。



図 2.1 超流動 ³He の *T-P-B* 相図 [32]。B 相 (B₂ 相) は低温低圧低磁場側で安定、A 相 (A₂ 相) は高温高圧高磁場側で安定である。A₁ 相は磁場下で T_c 直下のごく狭い温度域にのみ存在する。

なお、磁場下での A 相、B 相を特に A₂ 相、B₂ 相と呼ぶことがあるが、この論文では以下、特 に区別はしない。このような複数の秩序状態は従来型超伝導体のように spin 一重項軌道 s 波の Cooper-pair では説明できない。一般に spin 三重項状態もしくは軌道 p 波以上の角運動量を持つ pair の組み方を考えると複数の凝縮相をもつことが許される。超流動 ³He は spin 三重項 p 波である ことがよく知られている。また coherence length ξ はゼロ圧力で約 90nm から融解圧で約 18nm ま で変化する [32, p.487]。

2.1 Order parameter

一般に spin $\frac{1}{2}$ の粒子が Cooper-pair を組む場合について、秩序変数 $\psi(\mathbf{k})$ を

$$\boldsymbol{\psi}(\boldsymbol{k}) = \begin{pmatrix} \psi_{\uparrow\uparrow}(\boldsymbol{k}) & \psi_{\uparrow\downarrow}(\boldsymbol{k}) \\ \psi_{\downarrow\uparrow}(\boldsymbol{k}) & \psi_{\downarrow\downarrow}(\boldsymbol{k}) \end{pmatrix}$$
(2.1)

と表現しよう。行列の各成分はスピンの方向の組み合わせを表し、k は粒子の持つ波数を表すが、 Fermi 縮退した系に限るので $k = k_F \hat{k}$ となって方向を表す単位ベクトル \hat{k} のみに依存する。これ以 後 \hat{k} への依存性は省略することがある。これを天下り的に書き換えて

$$\psi(\hat{\boldsymbol{k}}) = \begin{pmatrix} 0 & d_0 \\ -d_0 & 0 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} d_2 + id_1 & -id_3 \\ -d_3 & d_2 - id_1 \end{pmatrix}$$
(2.2)

とする。このように書くと、 d_0 は singlet 成分の大きさを、 $d_{1,2,3}$ は triplet 成分の大きさを表すこと がわかる。³He は完全に triplet なので、 $d_0 = 0$ である。残りの triplet 成分は、パウリ行列

$$\boldsymbol{\sigma}_1 = \left(\begin{array}{cc} 0 & 1\\ 1 & 0 \end{array}\right) \tag{2.3}$$

$$\boldsymbol{\sigma}_2 = \left(\begin{array}{cc} 0 & -i\\ i & 0 \end{array}\right) \tag{2.4}$$

$$\boldsymbol{\sigma}_3 = \left(\begin{array}{cc} 1 & 0\\ 0 & -1 \end{array}\right) \tag{2.5}$$

を用いて

$$\begin{pmatrix} d_2 + id_1 & -id_3 \\ -d_3 & d_2 - id_1 \end{pmatrix} = \sum_{\mu} \boldsymbol{d}_{\mu}(\hat{\boldsymbol{k}})\boldsymbol{\sigma}_{\mu}i\boldsymbol{\sigma}_2$$
(2.6)

と書くことができる。つまり $d_{1,2,3}$ はこのように定義したベクトル $d(\hat{k})$ の各成分になっている。ベ クトル $d(\hat{k})$ はスピン空間でのベクトルである。その物理的意味は理解しにくいが、Cooper-pair の スピン角運動量は d の方向ではゼロになっている。つまりスピンと直交する方向を示していると言 える。この $d(\hat{k})$ を秩序変数として扱うことが、spin triplet 超流動体を考える時には有効である。

2.1.1 unitary state

元の秩序変数 $\pmb{\psi}$ とそのエルミート共役 $\pmb{\psi}^\dagger$ の積を考えると

$$\boldsymbol{\psi}\boldsymbol{\psi}^{\dagger} = \boldsymbol{d} \cdot \boldsymbol{d}^{*} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} + i \sum_{\mu} [\boldsymbol{d} \times \boldsymbol{d}^{*}]_{\mu} \boldsymbol{\sigma}_{\mu}$$
(2.7)

と書くことができる。一般に行列 U が UU[†] = 1(1 は単位行列) であるとき、U は unitary である と言う。 ψ は超流動 gap の大きさ $\Delta(T)$ を含んでいるが、エネルギーの次元の定数を除いて unitary であるとき、つまり

$$\boldsymbol{\psi}\boldsymbol{\psi}^{\dagger} = |\Delta|^2 \,\mathbf{1} \tag{2.8}$$

のとき、 unitary state であると言う。式 (2.7) を見ると、unitary state のとき $d \times d^* = 0$ である。 この d^* は d とはまた別の、スピンに直交する方向を向いているベクトルであり、すなわち $d \times d^*$ は Cooper-pair が持つスピン角運動量の大きさを反映している。([33, p.71]) つまり、unitary state では Fermi 面上局所的に見てもスピン角運動量を持たない。

2.1.2 p-wave pairing

さらに p 波、つまり軌道角運動量量子数 l = 1 であるということは、 $d(\hat{k})$ の運動量依存性が、 \hat{k} の 一次の形式で書けるということに他ならない。すなわち行列 $A_{i\mu}$ を用いて

$$d_{\mu}(\hat{\boldsymbol{k}}) = \Delta(T) \sum_{i} A_{i\mu} \hat{k}_{i}$$
(2.9)

と書ける。 $\Delta(T)$ はエネルギーギャップの大きさを表す。 $A_{i\mu}$ は規格化されており、 $tr(AA^{\dagger}) = 1$ と なっている。この $A_{i\mu}$ は triplet-p 波超流動体の内部自由度を表していて、一般には 9 個の複素数の 成分を持つため、18 の自由度が存在すると言われる。あらゆる $A_{i\mu}$ の内、温度、圧力、外部磁場に 依存して最も自由エネルギーが低くなるものが基底状態として選ばれる。

この $A_{i\mu}$ の具体的な形および分類を考える。 $A_{i\mu}$ はその対称性、物理的要請から以下の 4 種類(と本質的に同じ形)しかとることができない。

$$\begin{aligned} 1. \ A_{\text{polar}} &\longrightarrow \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \\ 2. \ A_{\text{planar}} &\longrightarrow \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \\ 3. \ A_{\text{BW}} &\longrightarrow \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \\ 4. \ A_{\text{ABM}} &\longrightarrow \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ i & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \end{aligned}$$

この A_iµ の対称性による分類が、そのまま超流動 ³He で実現し得る相の分類になる。

■polar 相

$$A_{i\mu} = A_{\text{polar}} = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$
(2.10)

のとき、polar 相と呼ばれる。オーダーパラメータ $d(\hat{k})$ が、スピン空間の単位ベクトル \hat{d} と運動量 空間の単位ベクトル \hat{m} で以下のように表現されるため、このように呼ばれる。

$$\boldsymbol{d}(\hat{\boldsymbol{k}}) = \Delta_0 \hat{\boldsymbol{d}}(\hat{\boldsymbol{m}} \cdot \hat{\boldsymbol{k}}) e^{i\phi}$$
(2.11)

つまり $d(\hat{k})$ の方向は常に \hat{d} の向きで、かつ振幅の \hat{k} 依存性があるベクトル \hat{m} と \hat{k} の内積で表現される。



図 2.2 polar 相オーダーパラメータの \hat{k} 依存性。中央の黄色い球が運動量空間での Fermi 球を 表しており、周りの曲面と Fermi 球との距離が、その方向の運動量でのギャップの大きさに比 例している。 \hat{m} を北極方向とすれば、赤道上でギャップが潰れており、 \hat{m} 方向まわりに対称で ある。

図 2.2 はその振幅の **k** 依存性を表した模式図である。黄色い球がフェルミ面を示しており、**k** 空間 での方向のギャップの大きさをフェルミ面上の点から外側の青い面までの距離で表現している。当 然ながらフェルミ球の半径 $E_{\rm F}$ と Δ_0 のスケールは正しい比ではない。polar 相はバルクの ³He では 実現しない。1 次元空間に近い細い管の内部での実現が予想されていたが、未だ確認はされていな い。しかしそれより先に最近、強い 1 軸異方性のあるエアロジェル中で実現することが確認された (Zhelev *et al.* [22])。

■planar 相

$$A_{i\mu} = A_{\text{planar}} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0\\ 0 & 1 & 0\\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$
(2.12)

のとき、planar 相と呼ばれる。planar 相ではオーダーパラメータは、k 空間でのある方向を表す単 位ベクトル \hat{l} を用いて

$$\boldsymbol{d}(\hat{\boldsymbol{k}}) = \Delta_0 \boldsymbol{R} \left[\hat{\boldsymbol{k}} - \hat{\boldsymbol{l}}(\hat{\boldsymbol{l}} \cdot \hat{\boldsymbol{k}}) \right] e^{i\phi}$$
(2.13)

と表される。ここで \mathbf{R} はスピン空間と \mathbf{k} 空間での相対回転を表す三次元回転行列である。この planar 相は凝縮エネルギーが polar 相と BW 相の中間になるため、バルクの熱平衡状態では実現し ようがない [33, p.120]。しかし、二次元空間と見なせる coherence length ξ 程度のギャップの間に 閉じ込めた場合には実現する可能性があると言われている。

■BW 相

$$A_{i\mu} = A_{\rm BW} = \frac{1}{\sqrt{3}} \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0\\ 0 & 1 & 0\\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}$$
(2.14)

という状態は、Vdovin (1963) および Balian, Werthamer (1963) によって初めに提唱された [33, p.80], [34,35]。このことから"Balian-Werthamer (BW) state"と呼ばれる。BW 状態は超流動 ³He の B 相 (³He-B) である。BW 相のオーダーパラメータは

$$\boldsymbol{d}(\hat{\boldsymbol{k}}) = \Delta \boldsymbol{R} \hat{\boldsymbol{k}} e^{i\phi} \tag{2.15}$$

と表される。**R** はやはりスピン空間と **k** 空間での相対回転を表す三次元回転行列である。これは一般には $\mathbf{R}(\hat{n}, \theta)$ と表現され、ある単位ベクトル \hat{n} が示す方向の周りに角度 θ だけ回転させる変換である。内部自由度はこの単位ベクトル \hat{n} 及び角度 θ と位相 ϕ である。 \hat{k} による依存性は完全に等方的で、図 2.3 のように等方的なギャップが空いている。



図 2.3 BW 相でのギャップの \hat{k} 依存性。中央の黄色い球が運動量空間での Fermi 球を表しており、周りの曲面と Fermi 球との距離が、その方向の運動量でのギャップの大きさに比例している。 B 相の場合は \hat{k} に依存せず全ての方向で一様なギャップを持つので、曲面は球となっている。

BW 相でのオーダーパラメータ内部自由度は位相因子 ϕ と、回転行列 **R** で表現される。

■ABM 相

$$A_{i\mu} = A_{ABM} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0\\ i & 0 & 0\\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$
(2.16)

と書ける状態は、やはり考案者の名前をとって "Anderson-Brinkman-Morel (ABM) state"と呼ば れる([33, p.82], [36, 37])。超流動 ³He の A 相(³He-A)がこの ABM 状態である。ABM 相での オーダーパラメータは

$$\boldsymbol{d}(\hat{\boldsymbol{k}}) = \Delta_0 \hat{\boldsymbol{d}} \left[(\hat{\boldsymbol{m}} + i\hat{\boldsymbol{n}}) \cdot \hat{\boldsymbol{k}} \right]$$
(2.17)

と表現される。*î*n, *î* は運動量空間での単位ベクトルであり、互いに直交している。このオーダーパ ラメータの振幅は図 2.4 のようになっている。



図 2.4 ABM 相でのオーダーパラメータの \hat{k} 依存性。図の見方は BW 状態の場合と同じである。 ABM 状態ではギャップは等方的ではなく、Fermi 球の北極と南極 (± \hat{l} の方向) にノードを持つ。 赤道方向で最大のギャップ Δ_0 となっている。

 $\hat{l} = \hat{m} \times \hat{n}$ の方向で、ギャップがノードを持っていることがわかる。また、他の相のように実関数に全体で位相因子 $e^{i\phi}$ がかかる形ではなく、本質的に複素数であり、運動量空間での方向によって位相のねじりが入る。逆に言えば、全体の位相因子は \hat{l} 周りの \hat{m}, \hat{n} の回転を指定する。ABM 相での内部自由度はスピン空間の単位ベクトル \hat{d} 、運動量空間の単位ベクトル \hat{l} 、そして位相因子 ϕ で記述される。

本実験の主たる対象はこの ABM 相(³He-A) なので、以下では A 相について詳しくみていくことにする。

2.2 chiral superfluid ³He-A

2.2.1 Chirality

A 相でのオーダーパラメータの内部自由度を表す単位ベクトル \hat{d} , \hat{l} をも、以下では簡便のためオー ダーパラメータと呼ぶことがある。A 相のオーダーパラメータはスピン空間の自由度を表す \hat{d} と、 軌道の自由度を表す \hat{l} に完全に分離された形で表現される。この \hat{d} , \hat{l} がどのような意味を持っている のか考える。 $d = \Delta_0 \hat{d}(\hat{m} + i\hat{n}) \cdot \hat{k}$ を使って、クーパー対のスピンの方向を明示的に示した (2.1) 式 を表現しよう。今、 \hat{d} の方向を x 方向と定義することにすると、

$$d_1 = \Delta_0(\hat{\boldsymbol{m}} + i\hat{\boldsymbol{n}}) \cdot \hat{\boldsymbol{k}}$$

$$d_2 = 0$$

$$d_3 = 0$$
(2.18)

となっているから、式 2.2 より

$$\begin{pmatrix} \psi_{\uparrow\uparrow}(\mathbf{k}) & \psi_{\uparrow\downarrow}(\mathbf{k}) \\ \psi_{\downarrow\uparrow}(\mathbf{k}) & \psi_{\downarrow\downarrow}(\mathbf{k}) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} d_2 + id_1 & -id_3 \\ -d_3 & d_2 - id_1 \end{pmatrix}$$
$$= \Delta_0(\hat{\mathbf{m}} + i\hat{\mathbf{n}}) \cdot \hat{\mathbf{k}} \begin{pmatrix} i & 0 \\ 0 & -i \end{pmatrix}$$
(2.19)

となって、スピン ↑↓ と ↓↑ のクーパー対は振幅ゼロであることがわかる。A 相はスピン三重項のう ち ↑↑ と ↓↓ のペアしか存在しないのである。そして同時にスピンの量子化軸 *z* は、 \hat{d} の方向 *x* とは 必ず直行していることがわかる。特に外部から十分強い磁場を与えると、熱平衡状態では \hat{d} ベクトル は強い磁場(そして磁化)とは必ず直交する。

また、 $d(\hat{k})$ の \hat{k} (すなわち運動量空間での角度に対する)依存性は、普通の三次元極座標表示 (θ, ϕ_0) で表すと(複素数の位相の ϕ と紛らわしいので添字の 0 を付ける) $\hat{m}, \hat{n}, \hat{l}$ をそれぞれ $x \to (\pi/2, 0), y \to (\pi/2, \pi/2), z \to (0,$ 任意)方向として

$$\boldsymbol{d}(\theta,\phi_0) \propto \begin{pmatrix} 1\\i\\0 \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \cos\phi_0 \sin\theta\\\sin\phi_0 \sin\theta\\\cos\theta \end{pmatrix}$$
$$= \sin\theta e^{i\phi_0} \tag{2.20}$$

となっている。これは、球面調和関数 $Y_1^1 = \sqrt{3/8\pi} \sin \theta e^{i\phi_0}$ と同じ形である。つまりは、 $\hat{z} = \hat{l}$ 方向に軌道角運動量量子数 +1 をもった状態になっていることになる。すなわち、 \hat{l} ベクトルはクー パー対の軌道角運動量の方向をあらわしている [33, p.82]。このことはスピン ↑↑ のペアも ↓↓ のペア も同じで、共に同じ方向 \hat{l} に軌道角運動量を揃えている。これは、ABM 状態ではいわゆるカイラル 対称性が破れていることになって、この \hat{l} ベクトルがカイラリティの方向を示しているということに なる。

2.2.2 Free energies

ABM 状態の対称性から、クーパー対の形成によって得られる凝縮エネルギーの大きさは定まる [33, p.120]。しかし、オーダーパラメータに残った内部自由度 ($\hat{d}, \hat{l}, \hat{m}, \hat{n}$)の配置によって変化 する諸自由エネルギーが存在する。それらの絶対値は凝縮エネルギーよりも3桁程度小さいが、オー ダーパラメータ内部自由度の各ベクトルの配位を決定する重要な役割を果たす。

■Condensation energy

ー般的に超流動の振幅が必ずゼロにならざるを得ない容器の壁あるいは自由表面(気液共存界面)で は、表面に垂直方向の運動量を持ったクーパー対の対破壊が起こる。つまり表面の法線ベクトルを \hat{w} としたとき、 \hat{w} 方向の超流動ギャップが潰れてしまう。しかし ABM 状態では、元々ギャップが $\pm \hat{l}$ 方向でノードを持っていて振幅がゼロであるため、 $\hat{l} \parallel \hat{w}$ となるように向けると、対破壊によるエネ ルギーロスを避けることができる。このエネルギーは凝縮エネルギーのオーダーであるため、壁のご く近く(距離 ξ 程度)では、必ず \hat{l} が表面に垂直に立つことになる [33, p.186]。

■Dipole energy

クーパー対を組んでいる粒子間には、そのスピンの磁気モーメントに起因する磁気双極子相互作用 (dipole 相互作用)がはたらく。その dipole 相互作用によるエネルギー、dipole エネルギー $f_{\rm D}$ は、 オーダーパラメータ $d(\hat{k})$ を用いて

$$f_{\rm D} = \lambda_{\rm D} N_{\rm F} \left\langle 3|\hat{\boldsymbol{k}} \cdot \boldsymbol{d}(\hat{\boldsymbol{k}})|^2 - |\boldsymbol{d}(\hat{\boldsymbol{k}})|^2 \right\rangle_{\hat{\boldsymbol{k}}}$$
(2.21)

と書ける [33, p.177]。ここで、 $N_{\rm F}$ は Fermi 面での状態密度、 $\lambda_{\rm D}$ は dipole coupling parameter と 呼ばれる量で、軌道角運動量量子数 lの粒子間では

$$\lambda_{\rm D} = \frac{3\pi}{8} \frac{1}{l(l+1)} \frac{\gamma^2 \hbar^2}{a^3 E_{\rm F}} \frac{1}{\left(N(0)|V_l|\right)^2}$$
(2.22)

と定義される。 V_l は pair-interaction constant と呼ばれる数、a は平均粒子間距離で $a = (3\pi^2)^{1/2}k_F^{-1}$ と表わせる。 $N(0) = N_F/2$ は片方のスピンの Fermi での状態密度である。 超流動 ³He では p 波、つまり l = 1 のペアを組む。具体的に計算すると

$$\lambda_{\rm D} \approx 5 \times 10^{-7} \tag{2.23}$$

となる [33, p.177]。f_D を ABM 状態の d(k) の表式を用いて書き直すと

$$f_{\rm D}^{\rm ABM} = -\frac{2}{3}\lambda_{\rm D}N_{\rm F}\Delta_0(T)^2(\hat{\boldsymbol{d}}\cdot\hat{\boldsymbol{l}})^2 + \text{const.}$$
(2.24)

とできる。すなわち、 $\hat{d} \parallel \hat{l}$ のとき自由エネルギーが最小の状態になる。言い換えれば dipole エネル ギーだけを考える場合には、 $\hat{d} \parallel \hat{l}$ が達成され、この状態を dipole-lock されているという。

■Magnetic energy

ー般的に、外部磁場 **H** に対する磁化率はテンソル量で表される。ABM 状態では、この磁化率テン ソル χ が d の方向に対して等方的でない、つまり $\chi_{\mu\nu} = \chi \delta_{\mu\nu}$ と表せない。具体的には

$$\chi_{\mu\nu}^{\text{ABM}} = \chi_N \delta_{\mu\nu} - \Delta \chi \hat{d}_\mu \hat{d}_\nu \tag{2.25}$$

と書ける [33, p.181]。ここで $\Delta \chi$ はいわゆる Yosida function $Y_0(T)$ を用いて

$$\Delta \chi = \chi_{\rm N} \frac{1 - Y_0}{1 + F_0^a Y_0} \tag{2.26}$$

と表される。このような磁化率テンソルから、磁気エネルギー

$$f_H = -\frac{1}{2} \sum_{\mu\nu} \chi_{\mu\nu} H_{\mu} H_{\nu}$$
(2.27)

を計算すると

$$f_H^{\text{ABM}} = \frac{1}{2} \Delta \chi (\hat{\boldsymbol{d}} \cdot \boldsymbol{H})^2 + \text{const.}$$
(2.28)

となる。この表式が意味するところは、 $\hat{d} \perp H$ のとき磁気エネルギーが最小になるということであり、2.2.1 節で述べた \hat{d} が磁場と直交するということと対応している。ところで係数 $\frac{1}{2}\Delta\chi$ の大きさは T_c 近傍、融解圧でおよそ 5.4 $(1 - T/T_c)$ Jm⁻³T⁻² である [33, p.181]。これを dipole エネルギーの大きさと比較した場合、磁場が約 3 mT で同じ大きさになる。言い換えれば、dipole 磁場は 3 mT 程度であると言える。それよりも十分強い磁場をかけた場合は、 \hat{d} ベクトルは完全に磁場に垂直な平面に拘束されることになる。

■Gradient energy

オーダーパラメータが一様でなく、空間変化しているとその分エネルギーロスが生じる。それをここ では gradient エネルギー f_{grad} と呼ぶことにする。これは ABM 状態では超流動速度 v_{s} と \hat{l}, \hat{d} の空 間勾配を用いて

$$f_{\text{grad}}^{\text{ABM}} = \frac{\frac{1}{2}\rho_{\text{s}\perp}(\hat{\boldsymbol{l}} \times \boldsymbol{v}_{\text{s}})^{2} + \frac{1}{2}\rho_{\text{s}\parallel}(\hat{\boldsymbol{l}} \cdot \boldsymbol{v}_{s})^{2}}{\frac{\hbar}{2m}\left[C_{\perp}\boldsymbol{v}_{\text{s}} \cdot (\nabla \times \hat{\boldsymbol{l}}) - (C_{\perp} - C_{\parallel})(\boldsymbol{v}_{\text{s}} \cdot \hat{\boldsymbol{l}})\hat{\boldsymbol{l}} \cdot (\nabla \times \hat{\boldsymbol{l}})\right]}{+ \frac{1}{2}\left(\frac{\hbar}{2m}\right)^{2}\left\{\begin{array}{c}K_{\text{s}}(\nabla \cdot \hat{\boldsymbol{l}})^{2} + K_{\text{t}}[\hat{\boldsymbol{l}} \cdot (\nabla \times \hat{\boldsymbol{l}})]^{2} + K_{\text{b}}[\hat{\boldsymbol{l}} \times (\nabla \times \hat{\boldsymbol{l}})]^{2}}{+\rho_{\text{sp}\perp}\sum_{\alpha}(\hat{\boldsymbol{l}} \times \nabla \hat{d}_{\alpha})^{2} + \rho_{\text{sp}\parallel}\sum_{\alpha}[(\hat{\boldsymbol{l}} \cdot \nabla)\hat{d}_{\alpha}]^{2}\end{array}\right\}}$$
(2.29)

と書き表される。ここで $\rho_{s\perp}, \rho_{s\parallel}$ は超流動密度テンソルの \hat{l} に垂直・平行な成分、 $\rho_{sp\perp}, \rho_{sp\parallel}$ は超流動スピン密度の \hat{l} に垂直・平行な成分である。 $C_{\perp}, C \parallel$ も同様に勾配エネルギー密度の \hat{l} に垂直・平行な成分の係数である。 K_s, K_t, K_b はそれぞれ \hat{l} の gradient エネルギーの、図 2.5 に示すような Splay 型、Twist 型および Bend 型の変化に対する係数である。



- (c) Twist, $(\hat{l} \cdot (\nabla \times \hat{l}))^2$
 - 図 2.5 *Î* の空間変化の分類 [33, p.197]。

式 2.29 には \hat{l} と \hat{d} の空間変化及び超流動流によるエネルギーが含まれる。弱結合極限では各係数は

$$\rho_{s\perp} = 2\rho_{s\parallel} = \frac{2}{5} \left(\frac{2m}{\hbar}\right)^2 N_F \Delta_0^2 \xi^2,$$
(2.30)

$$C_{\perp} = -C \| = \frac{1}{2} \rho_{\mathrm{s}} \|,$$
 (2.31)

$$K_{\rm s} = K_{\rm t} = \frac{1}{3} K_{\rm b} = \frac{1}{2} \rho_{\rm s \parallel}$$
 (2.32)

$$\rho_{\mathrm{sp}\perp,\parallel} = \rho_{\mathrm{s}\perp,\parallel} \tag{2.33}$$

と表される [33, p.196]。一般に強結合の効果を取り入れると、Fermi 液体の Landau パラメータを $l \leq 1$ に限定して展開して、

$$\boldsymbol{\rho}_{\rm s} = \left(\boldsymbol{D}^{\rm s}\right)^{-1} \boldsymbol{\rho}_{\rm s}^{0} \tag{2.34}$$

$$\boldsymbol{C} = \frac{1}{2} \rho_{\text{s}\parallel} \left(\boldsymbol{D}^{\text{s}} \right)^{-1} \left(\boldsymbol{1} - 2\hat{\boldsymbol{l}} \otimes \hat{\boldsymbol{l}} \right)$$
(2.35)

$$\boldsymbol{\rho}_{\rm sp} = \frac{\hbar}{2m} \frac{1 + \frac{1}{3} F_1^{\rm a}}{1 + \frac{1}{3} F_1^{\rm s}} \left(\boldsymbol{D}^{\rm a} \right)^{-1} \boldsymbol{\rho}_{\rm s}^{\rm 0}$$
(2.36)

$$K_{\rm s} = \frac{1}{4} \frac{m}{m^*} \rho_{\rm s\perp}^0 \tag{2.37}$$

$$K_{\rm t} = \frac{1}{12} \frac{m}{m^*} \left(\rho_{\rm s\perp}^0 + 7\rho_{\rm s\parallel}^0 - \frac{3\rho_{\rm s\parallel}^0}{1 + \frac{1}{3}F_1^{\rm s}\rho_{\rm s\parallel}^0/\rho} \right)$$
(2.38)

$$K_{\rm b} = \frac{1}{4} \frac{m}{m^*} \left(3\rho_{\rm s\parallel}^0 + \frac{8}{3}\rho\gamma - \frac{\rho_{\rm s\parallel}^0}{1 + \frac{1}{3}F_1^{\rm s}\rho_{\rm n\parallel}^0/\rho} \right)$$
(2.39)

となる。ここで

$$\boldsymbol{D}^{\rm s,a} = \mathbf{1} + \frac{1}{3} F_1^{\rm s,a} \frac{\boldsymbol{\rho}_n^0}{\rho}$$
(2.40)

$$\gamma = 3 \left\langle \frac{Y_0(\hat{\boldsymbol{k}};T)(\hat{\boldsymbol{k}}\cdot\hat{\boldsymbol{l}})^4}{(\hat{\boldsymbol{k}}\times\hat{\boldsymbol{l}})^2} \right\rangle_{\hat{\boldsymbol{k}}}$$
(2.41)

$$\boldsymbol{\rho}_{\rm s}^0 = \rho \mathbf{1} - \boldsymbol{\rho}_{\rm n}^0 \tag{2.42}$$

である [33, p.198]。なお、 \otimes は直積(テンソル積)を表す。 ρ_n^0 は、Fermi 液体の効果の無いときの 常流体質量密度テンソルであり、 $Y_0(\hat{k};T)$ は Yosida 関数で

$$Y_0(\hat{\boldsymbol{k}};T) = \int_0^\infty \frac{\beta}{2} \operatorname{sech}^2\left(\frac{\beta E_k}{2}\right) d\epsilon_k$$
(2.43)

と書かれる [32, p.536]。ここで $\beta = 1/k_{\rm B}T$ 、 $E_k = \sqrt{\epsilon_k^2 + \Delta^2}$ は波数 k の Bogoliubov 準粒子の1 粒子励起エネルギー、 $\epsilon_k = \hbar^2 k^2 / 2m^* - \mu$ は常流体での準粒子励起エネルギー、 m^* は準粒子の有効 質量、 μ は化学ポテンシャルである。この強結合の効果により、各パラメータは圧力・温度の関数と して僅かに変化する。gradient エネルギーの効果は概して、均一なオーダーパラメータを要請する が、次節で説明するように、均一にはならないことも多い。

2.2.3 Texture

ー般にオーダーパラメータ内部自由度は、 \hat{l} , \hat{d} の拘束条件やトポロジカルな理由により空間的に均 ーでないことがある。そのような空間変化を、特にオーダーパラメータがベクトル量で表されている ことから液晶の系とのアナロジーで、texture (織目構造)と呼ぶことが多い。texture は前節で上げ た各種自由エネルギーによる、しばしば競合する要請によって定まる。例えば、壁面のごく近くを 考えた場合、壁に垂直に磁場が印加されていると(つまり $\hat{w} \parallel H$)、凝縮エネルギーによる $\hat{l} \parallel \hat{w}$ 、 dipole エネルギーによる $\hat{l} \parallel \hat{d}$ 、そして磁気エネルギーによる $\hat{d} \perp H$ という3つの要請全てを満た すことはできない。そういう状況では、各エネルギーの大小関係によってとるべき配置は決定され る。磁場 H が dipole 磁場(≈3 mT)より十分小さい場合は dipole 相互作用の影響が磁場の影響よ りも大きいので、 $\hat{d} \parallel \hat{l} \parallel \hat{w}$ という配置になるであろう。一方磁場が強い場合では dipole-lock が外 れて $\hat{d} \perp H \parallel \hat{l} \parallel \hat{w}$ となる。ところでそのとき、壁から十分離れた位置では $\hat{l} \parallel \hat{w}$ という条件が無 くなるので $\hat{l} \parallel \hat{d} \perp H$ となるように \hat{l} が 90°回転する。この空間変化が起こる長さのスケールは、 gradient エネルギーと dipole エネルギーの大きさによって決まる。つまり、なるべく広い領域で dipole-lock の状態になる方が dipole エネルギーは利得が大きいが、あまり短い距離で \hat{l} が変化する と gradient エネルギーによる損失が大きくなるため、それらの合計が最小化するような距離スケー ルが必然的に定まる。このような gradient エネルギーと dipole エネルギーの競合によって決まる長 さを dipole healing length ξ_D と呼ぶ。言い換えれば、 ξ_D のスケールで texture が空間変化すると き、dipole エネルギーと gradient エネルギーの利得、損失の絶対値が等しくなる。 ξ_D は融解圧では

$$\xi_{\rm D}^{\rm ABM} = \frac{1}{2} \left(\frac{1}{\lambda_{\rm D}}\right)^{1/2} \xi_0 \approx 8 \ \mu {\rm m} \tag{2.44}$$

という程度の長さである。

2.2.4 Topological defects

例えば球状の容器に ³He-A を閉じ込めた場合を考えよう。表面では \hat{l} が垂直に立つことから、容器全体で連続に \hat{l} を変化させようと思っても図 2.6 のように、かならず 1 点以上の辻褄の合わない点が現れてしまう。



図 2.6 球状容器内での **û** の defect。円は球状容器の壁であり、いわゆる"ヘッジホッグ"型の欠陥を示している。この図では全ての矢印(**î**)が中心の点を向いているため(3 次元的に考えても同じ)、中心の 1 点では、どちらを向いても周囲となめらかに繋がることができない。

このような周囲とのつながりが取れていない構造を欠陥(defect)と呼ぶが、特に topological な 理由により発生し、安定化されることから位相欠陥(topological defect)と言う。上記のような容器 の構造上必然的に生じる場合は、全体の基底状態として安定に存在する。それだけではなく、仮に 理想的な無限に拡がるバルクの液体中であっても、励起状態でありながら準安定に存在する位相欠 陥もある。そのような欠陥は、やはり topological な(ただし"オーダーパラメータ空間"での)理 由 [33, p.212] によって安定化される。超流動 ³He に生じる topological defect は 0 次元構造(点欠 陥)の point boojum や 1 次元(線欠陥)の量子渦、2 次元(面欠陥)の soliton など次元の異なる分 類が存在する。さらにそれぞれが、オーダーパラメータの複雑さを反映して多様な構造を持ついくつ もの種類が考えられる。特に量子渦は回転冷凍機を使った実験で、条件次第で実際に様々な種類の渦 が安定に生じることが確かめられている [17]。

2.2.5 Composite soliton

ゼロ磁場、バルクの texture は dipole エネルギーを最小化する $\hat{d} \parallel \hat{l}$ が基底状態となる。しかし、 それは $\hat{d} = \hat{l} \ge \hat{d} = -\hat{l} \ge 0$ つの状況が縮退していることになる。このような 2 種類の基底状態 のドメインが存在した場合、間に \hat{d}, \hat{l} の相対角度が 180° 反転するドメインウォールが生じる。明ら かにこのドメインウォールは励起状態であるが、消滅しようとすれば片方の領域のオーダーパラメー タを全て "ひっくり返す"必要がある。それには莫大なエネルギーが必要となるため、結局準安定状 態として残ることになる。

このようなドメインウォールは、Maki らの理論的研究 [11–13] によれば \hat{d} , \hat{l} が互いに逆方向に回転し、全体で相対角度が 180° 変化する構造になる。これは複合 soliton (composite soliton) と呼ば



図 2.7 composite soliton の模式図 [11]。実線の矢印が \hat{l} ベクトル、破線の矢印が \hat{d} ベクトルを表している。

図 2.7 に composite soliton の texture の模式図を示す。ベクトルの空間変化の仕方は、図 2.7 に 示した twist 型の他に splay 型とそれらの中間の型が考えられる。

2.2.6 NMR response

普通の液体の物質に対して NMR 測定を行う場合、分子がランダムに運動しているため分子間 の dipole 相互作用は全体で相殺されてしまい、NMR の周波数に影響を及ぼさない。しかし超流動 ³He では Cooper-pair 間では軌道空間での運動とスピンの方向に相関があるため、dipole 相互作用 が残る。そのため NMR 共鳴周波数が磁場の大きさに比例した Larmor 周波数 $\omega_{\rm L}$ からシフトする (Leggett [38], 1972)。この周波数シフトの大きさがオーダーパラメータの内部自由度の形、すなわ ち texture に依存するため、NMR 測定は texture を決定する重大な手がかりを与える。

まずは均一 texture での一様なスピンの運動を考える。全体のスピンの大きさ S 及びオーダーパ ラメータ $d(\hat{k})$ の運動について考えていく [33, p.340]。スピンの運動についての有効 Hamiltonian

$$\mathscr{H}_{S} = \frac{1}{2}\gamma^{2}\boldsymbol{S}\boldsymbol{\chi}^{-1}\boldsymbol{S} - \gamma\boldsymbol{S}\cdot\boldsymbol{H} + f_{\mathrm{D}}$$
(2.45)

を与える。ここで χ は磁化率テンソルである。すなわち、第一項は自分自身の磁化によるエネル ギー、第二項は Zeeman エネルギー、そして第三項が dipole エネルギー (式 2.21) を表している。ス ピンの交換関係

$$[S_{\mu}, S_{\nu}] = i\hbar \sum_{\lambda} \epsilon_{\mu\nu\lambda} S_{\lambda}$$
(2.46)

はスピン空間でのベクトルである d に対しても同様に書けて [33, p.341]

$$\left[S_{\mu}, d_{\nu}(\hat{\boldsymbol{k}})\right] = i\hbar \sum_{\lambda} \epsilon_{\mu\nu\lambda} d_{\lambda}(\hat{\boldsymbol{d}})$$
(2.47)

となっている。この関係を用いて Heisenberg 方程式から $m{S}, m{d}(\hat{m{k}})$ の運動方程式を求めると

$$\dot{\boldsymbol{S}} = -\frac{i}{\hbar} \left[\boldsymbol{S}, \mathscr{H}_{S} \right] = -\boldsymbol{S} \times \frac{\delta \mathscr{H}_{S}}{\delta \boldsymbol{S}} - \boldsymbol{R}_{\mathrm{D}}$$
(2.48)

$$\dot{\boldsymbol{d}}(\hat{\boldsymbol{k}}) = -\frac{i}{\hbar} \left[\boldsymbol{d}(\hat{\boldsymbol{k}}), \mathscr{H}_{S} \right] = -\boldsymbol{d}(\hat{\boldsymbol{k}}) \times \frac{\delta \mathscr{H}_{S}}{\delta \boldsymbol{S}} + O(f_{\mathrm{D}})$$
(2.49)

と計算される。この $R_{\rm D}$ は dipole torque と呼ばれ、

$$\boldsymbol{R}_{\mathrm{D}} = -\frac{i}{\hbar} \left\langle \boldsymbol{d}(\hat{\boldsymbol{k}}) \times \frac{\delta f_{\mathrm{D}}}{\delta \boldsymbol{d}(\hat{\boldsymbol{k}})} \right\rangle + \mathrm{c.c.}$$
(2.50)

と書ける。Hamiltonian の変分を具体的に書き下せば十分に強い磁場の下では、

$$\dot{\boldsymbol{S}} = \gamma \boldsymbol{S} \times \boldsymbol{H} + \boldsymbol{R}_{\mathrm{D}} \tag{2.51}$$

$$\dot{\boldsymbol{d}}(\hat{\boldsymbol{k}}) = \boldsymbol{d}(\hat{\boldsymbol{k}}) \times \gamma \left(\boldsymbol{H} - \frac{\gamma}{\chi}\right)$$
(2.52)

となる (Leggett [39], 1974)。これらの方程式を Leggett 方程式と呼ぶ。なお、dipole torque は

$$\boldsymbol{R}_{\mathrm{D}} = 6\lambda_{\mathrm{D}} N_{\mathrm{F}} \Re \left(\left\langle [\hat{\boldsymbol{k}} \times \boldsymbol{d}(\hat{\boldsymbol{k}})] [\boldsymbol{k} \cdot \boldsymbol{d}^{*}(\hat{\boldsymbol{k}})] \right\rangle_{\hat{\boldsymbol{k}}} \right)$$
(2.53)

と表される。ここに具体的な A 相でのオーダーパラメータを代入すると、

$$\dot{\boldsymbol{S}} = \gamma \boldsymbol{S} \times \boldsymbol{H} + \Omega_{\rm A}^2 \frac{\chi}{\gamma^2} (\hat{\boldsymbol{d}} \times \hat{\boldsymbol{l}}) (\hat{\boldsymbol{d}} \cdot \hat{\boldsymbol{l}})$$
(2.54)

$$\dot{\hat{\boldsymbol{d}}} = \gamma \hat{\boldsymbol{d}} \times \left(\boldsymbol{H} - \frac{\gamma}{\chi} \boldsymbol{S} \right)$$
(2.55)

となる。これが A 相に対する Leggett 方程式である。ここで、 Ω_A は A 相での縦共鳴の周波数で、

$$\Omega_{\rm A} = \frac{6}{5} \frac{\gamma^2}{\chi_{\rm A}} g_{\rm D}(T) \tag{2.56}$$

と表される。 $g_{\rm D}(T) = \lambda_{\rm D} N_{\rm F} \Delta^2(T)$ は dipole coupling constant と呼ばれる [33, p.177]。この運動 方程式によれば、NMR パルスによって励起されたスピン及び \hat{d} ベクトルは、図 2.8 のような運動を 行う。



図 2.8 S, *d*の運動 [33, p.357]

Sの運動は、磁場の周りでのいわゆる歳差運動が僅かに楕円になる(z方向にも微かに振動する)。 \hat{d} の運動は熱平衡での方向を中心として「8の字型」の運動となる。図 2.8 は $\hat{l} \parallel \hat{d} \perp H_0$ の場合に tip 角 30°に励起した場合の運動である。このような時、スピンの運動の射影を観測する NMR で は、横共鳴周波数 ω_t が Larmor 周波数 $\omega_L = \gamma H_0$ からずれる。このずれ $\omega_t - \omega_L$ を周波数シフトと 呼ぶ。

tip 角 θ が十分小さい ($\theta \ll \pi/2$) とき、周波数シフトの大きさは Ω_A を使って

$$\omega_{\rm t}^2 = \omega_{\rm L}^2 + R_{\rm T}^2 \Omega_{\rm A}^2 \tag{2.57}$$

と表される。ここで $R_{\rm T}^2$ は無次元のパラメータであり、texture に依存する。これは慣例的に二乗という形で書かれているが、負の値も取り得る。十分強磁場 ($H_0 \gg 3~{
m mT}$) であれば

$$\omega_{\rm t} = \omega_{\rm L} + R_{\rm T}^2 \frac{\Omega_{\rm A}^2}{2\omega_{\rm L}},\tag{2.58}$$

均一 texture の場合では、外部磁場が z 方向であるとして

$$R_{\rm T}^2 = 1 - (\hat{\boldsymbol{d}} \times \hat{\boldsymbol{l}})^2 - l_z^2 \tag{2.59}$$

となっている。バルクの基底状態 $\hat{\boldsymbol{d}} \parallel \hat{\boldsymbol{l}} \perp \boldsymbol{H}_0$ では $R_{\mathrm{T}}^2 = 1$ 、 $\hat{\boldsymbol{d}} \perp \hat{\boldsymbol{l}} \parallel \boldsymbol{H}_0$ では $R_{\mathrm{T}}^2 = -1$ となる。

以上は均一 texture の場合であり、空間変化する texture の場合はさらに複雑になる。まず、有効 Hamiltonian に gradient エネルギーの項が加わり

$$\mathscr{H}_{S} = \frac{1}{2}\gamma^{2} \boldsymbol{S} \boldsymbol{\chi}^{-1} \boldsymbol{S} - \gamma \boldsymbol{S} \cdot \boldsymbol{H} - \frac{1}{2} g_{\mathrm{D}}(T) (\hat{\boldsymbol{d}} \cdot \hat{\boldsymbol{l}})^{2} + \frac{1}{2} g_{\mathrm{D}}(T) \left\{ \xi_{\mathrm{D}}^{2} K_{\mathrm{sp}\parallel} \sum_{\mu} \left[(\hat{\boldsymbol{l}} \cdot \nabla) \hat{d}_{\mu} \right]^{2} + \xi_{\mathrm{D}}^{2} K_{\mathrm{sp}\perp} \sum_{i,\mu} \left[(\hat{\boldsymbol{l}} \times \nabla)_{i} \hat{d}_{\mu} \right]^{2} \right\}$$
(2.60)

となる [33, p.369]。ここで $K_{sp\parallel,\perp}$ は 1 のオーダーの無次元パラメータで、異方的超流動密度テンソ $\nu \rho_{sp\parallel,\perp}$ を用いて

$$K_{\rm sp\parallel,\perp} = \left(\frac{\hbar}{2m}\right)^2 \rho_{\rm sp\parallel,\perp} \frac{\gamma^2}{\Omega_{\rm A}^2 \chi \xi_{\rm D}^2} \tag{2.61}$$

と表される。ここからスピンの運動方程式が導かれ、

$$\dot{\boldsymbol{S}} = \gamma \boldsymbol{S} \times \boldsymbol{H} + \Omega_{\mathrm{A}}^{2} \frac{\chi}{\gamma^{2}} (\hat{\boldsymbol{d}} \times \hat{\boldsymbol{l}}) (\hat{\boldsymbol{d}} \cdot \hat{\boldsymbol{l}}) + \Omega_{\mathrm{A}}^{2} \frac{\chi}{\gamma^{2}} \left\{ \xi_{\mathrm{D}}^{2} K_{\mathrm{sp}\parallel} \left[\hat{\boldsymbol{d}} \times (\hat{\boldsymbol{l}} \cdot \nabla)^{2} \hat{\boldsymbol{d}} \right] + \xi_{\mathrm{D}}^{2} K_{\mathrm{sp}\perp} \left[\hat{\boldsymbol{d}} \times (\hat{\boldsymbol{l}} \times \nabla)^{2} \hat{\boldsymbol{d}} \right] \right\}$$
(2.62)

となる。ここで、 S, \hat{d}, \hat{l} は全て位置に依存することに注意しなければならない。一方、 \hat{d} の運動方程 式は、式 (2.55)と変わらない。これらの方程式を \hat{d} の熱平衡状態での配置 \hat{d}_0 からの変位 $d' = \hat{d} - \hat{d}_0$ が微小であるとして線型化する。その際d'を磁場の方向 z への縦 (longitudinal) 振動とそれと垂直 な横 (transverse) 振動に分解して、

$$\boldsymbol{d}' = g(\hat{\boldsymbol{d}}_0 \times \hat{z}) + f\hat{z} \tag{2.63}$$

とする。強磁場条件を仮定しているから $(H_0 \gg 3 \text{ mT})$ 、 \hat{d}_0 は x-y 平面に固定される。すなわち

$$\hat{\boldsymbol{d}}_0 = \cos\theta \hat{\boldsymbol{x}} + \sin\theta \hat{\boldsymbol{y}} \tag{2.64}$$

と書ける。このとき、*d'*の縦運動と横運動は分離された運動方程式に独立に従うことになる [33, p.368]。その場合の横共鳴に関する方程式は微分演算子

$$\mathscr{D} = -\xi_{\rm D}^2 \left[K_{\rm sp\perp} \nabla^2 + (K_{\rm sp\parallel} - K_{\rm sp\perp}) (\nabla \cdot \hat{\boldsymbol{l}}) (\hat{\boldsymbol{l}} \cdot \nabla) \right]$$
(2.65)

とポテンシャル

$$W_{\rm T} = 1 - \left\{ (\hat{\boldsymbol{l}} \times \hat{\boldsymbol{d}})^2 + l_z^2 + \xi_{\rm D}^2 \left[K_{\rm sp\perp} (\hat{\boldsymbol{l}} \times \nabla \theta)^2 + K_{\rm sp\parallel} (\hat{\boldsymbol{l}} \cdot \nabla \theta)^2 \right] \right\}$$
(2.66)

を用いて

$$(\mathscr{D} + V_{\mathrm{T}})\psi_{\mathrm{T},k} = R_{\mathrm{T},k}^2\psi_{\mathrm{T},k}$$

$$(2.67)$$

という Schrödinger 型の固有値方程式に帰着する。つまり、この方程式の固有関数となる振幅の定在 波モード $\psi_{T,k}$ が横共鳴の独立解として存在する。その定在波をスピン波と呼ぶ。モードの番号 k は 定在波の節の数を表していると考えてよく、実際に励起されるのは比較的低次のモードのみである。 高次のモードは振幅が正の領域と負の領域が混在している、つまり振動の位相が逆転している領域が あるため、全体で積分すると打ち消してしまう。これは外部(からの振動)磁場とカップルしていな いことになるためである。意図的にそのようなモードを観測しようと思うと、敢えて不均一な磁場を 作るコイルを用いるしかない。またこの微分方程式の固有値がそのまま周波数シフトの大きさ R_T^2 と なっている。微分項が無い場合は Leggett 方程式と一致する。

この微分方程式は、一般に3次元空間で解析的に解くことは出来ないので、過去には簡単な関数 型を仮定することで解を求めていた。しかし最近ではコンピュータによる数値計算によって任意の texture に生じるスピン波を(近似的に)求めることができる。

2.3 Preceding Studies

2.3.1 Experimental Studies of Solitons in Superfluid ³He-A

University of Southern California の Gould, Bartolac, Bozler は ³He-A に大きな NMR 励起パ ルスを撃ち込むことで soliton を生成する実験を行った [14]。彼らは図 2.9 に示すような容器に液体 ³He を入れ、パルス NMR を行った。



図 2.9 Gould et al. の用いた sample cell [14, Fig. 2]。H₁ はコイルの作る磁場の感度分布を表している。

その結果、NMR の tip 角にして 140 度以上のパルスを与えると何らかの defect が生成することを 発見した (図 2.10,2.11)。





Fig. 5. Fourier transforms of a sequence of free induction decay signals from the tip pulses following a 180° (spin-inverting) pulse. The bulk line is shown for comparison. The solid vertical line is at the Larmor frequency for normal ³He (γH_0). The times indicated are the delays between the 180° pulse and the tip pulse. Here P = 26.2 bar, $1 - T/T_c = 0.066$, $\gamma H_0/2\pi = 535$ kHz. The data were taken in coil C.

図 2.10 180° パルスを撃った直 後の NMR スペクトルの時間変 化 [14, Fig. 5]。各スペクトルは それぞれ小パルスに対する応答で ある。

Fig. 9. The observed frequency shift normalized to the zero-angle limit vs tip angle θ . The data points were taken with the ³He initially in the uniform texture. The solid line represents the function $(1 + 3\cos\theta)/4$. Here P = 26.2 bar, $\gamma H_0 = 535$ kHz, $1 - T/T_c = 0.075$.

図 2.11 soliton が発生する tip 角 [14, Fig. 9]。周波数シフト は tip 角 θ に依存して $(1 + 3\cos\theta)/4$ で変化するが、140° 程 度で曲線から外れている。ここで soliton が生成し始めると考 えられる。

図 2.10 を見ると、180° パルスを撃った直後は磁化が熱平衡と反転しているため、(1+3 cos θ)/4 = -1/2の辺りに信号が見えている。それは時間の経過とともに緩和現象によって小さくなるが、正の 側に戻ってきた信号の周波数は元の位置より明らかにシフトが小さく、0.5 倍程度となっている。こ れは磁気的な大擾乱によって磁気異方性を表す \hat{a} ベクトルがかき乱され、d-soliton [10] が生じたた めであると考えられる。軌道成分の異方性である \hat{l} は \hat{d} よりも変化するのが遅く(\hat{d} との dipole 相 互作用による間接的な力しか受けないためでもある)、直ちには追随しない。そのため大パルスの直 後には純粋な d-soliton が生成すると考えられる。しかしながら、同じ topology を持つ composite soliton の方がエネルギー的には安定なため [11–13,40]、十分な時間待てば d-soliton は composite soliton に変化すると考えられる。実際、この実験においても図 2.12 のように時間経過に従って Maki *et al.* による composite soliton の周波数である 0.7 前後に変化していく様子が観測された。な お Giannetta *et al.* も同様に磁気的な擾乱で defects が生成することを発見している [41] が、こちら では 55° 以上の tip 角で生成すると報告している。



Fig. 8. Typical data for the time evolution of the texture frequency R_T^2 . (a) The data on a linear time scale. (b) The same sequence on a log scale to emphasize the relative stability of the 0.55 shift as compared to orbital relaxation; also note the saturation of the evolution of R_T^2 . Here P = 26.2 bar, $\gamma H_0/2\pi = 535$ kHz, $1 - T/T_c = 0.069$.

図 2.12 soliton による周波数シフトの時間発展 [14, Fig. 8]。上下のパネルは同じデータを横軸 の時間が linear の場合と log の場合で描いたものである。大パルス直後は $R_T^2 = 0.55$ 程度であっ たものが 10 秒程度の時定数で 0.73 程度に変化している。 2.3.2 Observation of Intrinsic Magnus Force and Direct Detection of Chirality in Superfluid ³He-A 理化学研究所の Ikegami, Tsutsumi, Kono は、³He-A の自由表面(気液共存界面)での *î*ベクトルの向きを決定することに成功した [3,42]。



experimental cell

assembly of electrodes

図 2.13 Ikegami *et al.* による実験の概要図 [42, Fig. 3]。容器内部に液体 ³He の自由界面を作 り、イオンソースから electron bubble と呼ばれるイオンを放出し、表面に浮かべるようになって いる。そのイオンを上下の電極から電場を与えて振動させる。

図 2.13 のようなサンプルセルに途中まで ³He-A を溜め、自由表面を作った。なお、気液共存状態 が必要なため液体の圧力はほぼゼロでなくてはならないので、外部から磁場をかけて A 相を安定化 させている。ここにイオンの粒子(electron bubble)を浮かべて電場で運動させたときに、カイラル 超流動体である ³He-A の揃った軌道角運動量との相互作用により、粒子の進行方向と垂直な方向へ の力を受けたように見える [43]。この効果は "Intrinsic Magnus Effect"と呼ばれることがある。こ れによって受ける力は、軌道角運動量 \hat{l} の向きによって逆の向きになるため、電極に生じる電位差の 符号が \hat{l} の向きによって変わる。すなわち図 2.13 の Input 電極に振動電場を与え、right 及び left に 生じる電位差を測定する。chirality が存在しない場合は左右の電極には電位差が生じない。chirality が生じると図 2.14 のように電位差が発生し、その向きによって電位差の符号が反転する。


図 2.14 Chirality による電位差の発生 [3, Fig. 2]。A:電位差の温度依存性。転移温度 T_c より高い温度では電位差は生じていない。chirality の異なる 2 状態(Run1 と Run2)が観測された。 赤い実線はモデル計算による理論値。B:異なる外部磁場を与えた場合の変化。A 相と B 相の転移 温度 T_{AB} は外部磁場によって変化するため、より弱い磁場を印加した場合では T_{AB} を下回った時に non-chiral である B 相に転移し、電位差が生じなくなっていることがわかる。

このような原理によって Ikegami *et al.* は自由表面でのカイラリティの方向を実験的に決定する ことに成功した。その結果によれば、 *û*の方向は常流動液体から冷却して超流動に転移させるごとに ランダムに決定されていたようである。ただし、磁場の方向に対して依存性があり、ある方向に磁 場をかけた場合には生じるカイラリティの方向がほぼ片方に限定されるという現象が観測された (表 2.1)。

	$\begin{aligned} \text{Monodomain} \\ \hat{\pmb{l}} = + \hat{z} \end{aligned}$	$Monodomain\\ \hat{\boldsymbol{l}} = -\hat{z}$	Multi domains
B = +0.34T	$0\% \ (0/18)$	83%~(15/18)	17%~(3/18)
B = -0.34T	33%~(8/24)	42%~(10/24)	25%~(6/24)

表 2.1 Ikegami et al. によるカイラリティの発生確率 [42, Table II]

また 20% 前後の確率でマルチドメイン、すなわち観測している表面全体でカイラリティが均一で ないと思われる状態が生成された。とはいえこれは両極端のモノドメインの中間状態であることしか 原理的にわからない(図 2.15)。また、例えば小さな地震のような僅かなショックによって変化した り消滅したりしたようである(図 2.16)。



図 2.15 Ikegami *et al.* によるマルチドメインの観測 [42, Fig. 12]。(a) はモノドメインと微妙 に異なる状態が観測された様子。(b) はそのときのドメインの想像図である。



図 2.16 地震による chiral texture の変動 [42, Fig. 13]。

2.3.3 Intrinsic Pinning of Vorticity by Domain Walls of \hat{l} Texture in Superfluid ³He-A

Manchester University の Walmsley, White, Golov は回転冷凍機を用いて slab 状の ³He-A に入 る量子渦と \hat{l} の texture (soliton) との関係を調べた [2]。彼らは厚さ 0.26 mm と 0.44 mm の disk 型 (半径はいずれも R = 5.00 mm) 容器を持つ Torsional Oscillator を作成し、それらの共鳴周波 数 ν_R 及びバンド幅 ν_B を測定した。これらが、冷凍機の DC 回転を与えた際にどのように変化する かを調べることによって slab 状の空間内での texture と量子渦が発生する際の臨界速度について考 察した。

 ν_R 及び ν_B は容器内部での液体 ³He の超流動成分と常流動成分の相対運動に強く依存している。 容器の縁での(接線方向の)相対速度 v(R) は、cryostat の回転速度 Ω での剛体回転流となる常流動 成分 $v_n(R) = \Omega R$ と trap された量子渦の本数 N_{trap} に依存した超流動成分 $v_s(R) = N_{\text{trap}}\kappa_0/2\pi R$ の差で表される(κ_0 は循環量子)。

$$v(R) = v_n(R) - v_s(R) = \Omega R - N_{\text{trap}} \kappa_0 / 2\pi R$$
(2.68)

相対速度が無い、すなわち v(R) = 0 のとき ν_R が最大かつ ν_B が最小となる。 Ω に対する ν_B の変化は図 2.17 のようになる。



図 2.17 Ω に対する ν_B の変化 [2, Fig. 3]。D = 0.44 mm のサンプルを 3 種類の異なる方法で 転移させた状態について測定したものである。• は渦を導入する前の測定、• は正の回転方向に $\Omega = 0.5$ rad/s で回転させた後の測定、 Δ は負の回転方向に $\Omega = -0.5$ rad/s で回転させた後の 測定をそれぞれ示している。trap された循環量子(量子渦)によって流れによる Fréedericksz 転 移の生じる回転速度が Ω_0 だけ移動していることがわかる。実線は正負の方向について対称な形 をしている。破線はそれを Ω_0 だけずらしたものである。

この測定は 3 種類の初期 texture を用いている。"Uniform"は $\Omega \approx 0.4$ rad/s で回転させながら冷却して T_c を越えさせることで、一方向に揃った \hat{l} の texture を得たものである。"N→A"は回転させずに冷却して T_c を越えたもので、彼らはある程度の数の domain wall が存在すると考えているようである。最後に "B→A"は B 相から温めて A 相に転移させたものであって、多くの domain wall が存在するようである。

図 2.17 の測定は以下のような手順で行われた。まずそれぞれの方法で A 相に転移させ初期状態を 作る。 Ω を小さい領域 (-0.02 rad/s $\leq \Omega \leq 0.02$ rad/s) で変化させながら ν_B を測定し、"•"のデー タを得る。次に一旦 $\Omega = +0.5$ rad/s まで回転させてからゼロまで戻し、小さい領域で ν_B を測定す る ("o"のデータ)。それから同様に $\Omega = -0.5$ rad/s まで回転させ、戻して小さい領域での " Δ "の データを測定する。但し "Uniform"の測定では、正の方向に回転させて渦を導入した後、負の方向へ ゆっくりでも回転させると直ちに状態が変化してしまうため、"Uniform"での"。"データは左半分が 測定できていない (図 2.19 も参照) と彼らは主張している。もっとも、これは結局 Ω_0^+ が "N→A" などと比較してかなり小さいからである。

図 2.17 での Ω_0 に相当する Fréedericksz 転移の offset(Ω_{trap}) は、事前に回転させた角速度 (Ω_{prep}) によって変化する。その様子を表したグラフが図 2.18 である。



図 2.18 Ω_{prep} の変化に対する Ω_{trap} のヒステリシスループ [2, Fig.4]。厚みの異なる slab 及び "B→A"と "N→A"の各組み合わせについてのデータが示されている。また、実線は $\Omega_c = 0.03$ rad/s での strong pinning model による計算。

初期 texture の作り方、slab の厚さに関わらず一つの loop に乗っているとみることができる。た だし、彼らはこの測定を行う前に、loop の再現性を求めて状態を"train"したと述べている。すなわ ち転移させた後に正負の方向に 0.5 rad/s で回転させた。ところで、図 2.18 には loop を特徴づける 2 つの量があることがわかる。一つは Ω_{trap} が飽和する値である Ω_0 である。 Ω_0 は内部に導入され る渦の密度が限界に達したときの角速度であると考えられる。これに対応する trap された循環量子 の大きさ N_{trap} は $N_{trap} = 2\pi R^2 \Omega_{trap}/\kappa_0$ から求めると 50 から 70 程度と見積もられる。なお、 Ω_0 は 3 日経っても特に減衰などはしなかったようである。もう一つの量は loop が $\Omega_{trap} = 0$ のライン と交差する位置 Ω_c である。詳しくは後述するが、この量は渦が消滅し始める回転速度に対応してい る。必ずしも生成の臨界速度とは限らないが、この場合はそれと一致しているというのが彼らの主張 である。

ともあれ、厚さの異なる slab、"B→A"と "N→A"の両初期状態において、彼らのいうところの Ω_c と Ω_0 はいずれも 0.03 rad/s 程度と同じくらいの値となっていた。しかし "Uniform"な初期状態か らの測定では大きく異なる結果が得られた。その様子を図 2.19 に示す。



図 2.19 "Uniform" texture における Ω_{trap} のヒステリシスループ。[2, Fig.5]

やはりヒステリシスは示しているが、渦が発生し始める角速度 Ω_c は図 2.18 よりも 2-3 倍大きく、 Ω_0 は一桁程度小さい。また、一度正方向に回転させた後逆方向に回転させると、 $\Omega_c^- \approx -0.04$ rad/s ですぐに状態が変化してしまうらしく、loop が対称な形になっていない。そのため明らかに、図 2.18 の測定前に行っていた"train"はしていないはずである。この非対称性については、chiral symmetry が破れており回転方向に対して非対称であることから妥当なものであると考えられる。つまり、 \hat{l} が 一方向に揃っているため、容器の縁付近では巨視的な軌道角運動量に対応した edge current が流れ ているはずで、常流動と超流動の相対速度はもともとかなり速くなっていると考えられる。そのゆえ 臨界角速度に回転方向で大きな差が生じることは十分あり得る。逆回転させて状態が変化するという のは、渦が生じたあと元と逆向きに \hat{l} が揃ったドメインが発生して、広がっていくという現象である と彼らは主張している。また Ω_0 は $N_{\rm trap} \approx 10$ に相当する。

さて、trap された渦(循環量子)が減少する過程は2通り考えられる。一つは壁際で渦が生成する臨界速度 v_c を越えたことにより逆向きの渦が生成する場合である。もう一つは既に存在する渦が(pinning を外れて)動くことにより壁際に移動し消滅する場合である。この時、渦を動かす力は Magnus 力 $F_M = \rho_s \kappa_0 v$ であると彼らは述べている。この力が渦の pinning を外すときの臨界速度 v_p が "unpinning velocity"である。いずれにせよ、渦は容器の壁の極付近で消滅する。実際にどち らの過程によって消滅が起こるかは、 v_c と v_p の大小関係によって決まる。すなわち、以下の2つの 状況が考えられる。

\blacksquare (a) strong pinning $v_p > v_c$

このとき回転によって渦は動かず、生成・消滅いずれも $|v(R)| = v_c$ で起こる。その場合、十分速く回転させた後、ゼロ回転に戻すことによってその時点でのトラップされた渦による循環で $|v(R)| = v_c$ となる (そこまでしか消えない)。すなわち、ヒステリシスループ (図 2.18) における Ω_0 が $\Omega_c = v_c/R$ に対応することになる。また同時に、トラップされた渦を完全に消すためには準備で回転させたのと逆の方向に Ω_c まで回転させる必要があるので、ループの $\Omega_{trap} = 0$ と交わる位置も Ω_c となるはずである。図 2.18 はまさにそのようになっているため、このときは strong pinning の条件が達成されていると考えられる。

(b) weak pinning $v_p < v_c$

こちらのケースでは渦の消滅が $|v(R)| = v_p$ で起こる。そのため $\Omega_0 = v_p/R$ となる。また、十分 に渦を導入したあと、渦をゼロにするためにはやはり反対に $\Omega = v_p/R$ まで回転させる必要があ る。ここまでは、 v_c が v_p になっただけで strong pinning の場合と同じであるが、新たな渦の生成 は $|v(R)| = v_c > v_p$ にならないと起こらない。そのため、ヒステリシスループの形状が異なり、図 2.20(b) のようになると考えられる。



図 2.20 ヒステリシスループの形状。weak pinning の場合では渦の消滅と生成する速度に差が あるので、ループの途中に段(plateau)が付く。なおこれらの図は正と負の両方向の回転に対し て Ω_c, Ω_p が同じ場合である。

図 2.19 のグラフは、完全なループを描くには至っていない。というのも、"uniform"な texture を 作って最初に少しずつ回転させていくことによってこのグラフが得られたが、負方向への回転をある 程度より大きくすると様子が変わってしまって元のループには戻らなかったと彼らは述べている。恐 らく、何度か正負の大きな回転を繰り返すと図 2.18 のループとほとんど同じものになったのではな いだろうか。そのせいでループの形状が確定していないが、始めに正の方向に回転させたときに立 ち上がる Ω_{prep} は "uniform"な場合の Ω_c に対応していると見てよい。そして負の方向に回転させた 時、一旦 $\Omega_{trap} = 0$ に plateau ができていることがわかる。この特徴が weak pinning の予想と一致 していることから、この plateau が観測される時点(逆回転の速さが Ω_c^- までの時点)までは weak pinning となっていると考えられる。なお Ω_c^- 以上の速度で負方向に回転させると再現性のあるデー タが得られなかったということで、彼らは "uniform"では無くなってしまったと判断している。すな わち、渦の生成だけではなく、ある種の domain wall が生じたということである。

この2つの状態に対する測定の結果から、以下のことがわかる。正負の方向への回転を繰り返した "trained"の状態では strong pinning ($\Omega_{c,t} < \Omega_{p,t}$) であり、 $\Omega_{c,t}$ は正負ともに 0.03 rad/s である。 これは slab の厚さには特に依存していない。"uniform"では逆に $\Omega_{c,u} > \Omega_{p,u}$ である。 $\Omega_{c,u}$, $\Omega_{c,u}^-$, $\Omega_{p,u}$ はデータ数が少なくてはっきりとはしていない。図 2.19 に $\Omega_{c,u}$ の値として記してある 0.055 rad/s と 0.095 rad/s はいずれもモデルによる予言値であるが、これらが実験値と一致しているとは 判断しがたい。 $\Omega_{c,t} = 0.03$ rad/s よりは大きいように感じるが、それも断言はできない程度である。 ともあれ、彼らの主張によれば "uniform"は "trained"に比べて Ω_c が 2 から 3 倍程度大きく、かつ 渦の pinning が圧倒的に弱いということになる。彼らはこれを、"trained"の状態では多くの domain wall があるということで説明している。すなわち図 2.21 で示すような domain wall が離合集散を繰 り返す形のネットワーク構造ができており、そこに量子渦が pinning されているのではないかという 主張である。



図 2.21 slab 中における domain wall の模式図 [2, Fig.1]。左のパネルは slab を横から見た時の \hat{l} の texture。左上が ld wall(常に $\hat{l} = \hat{d}$ であって、後述の DLS と同じ)で、左下が l wall(左側で $\hat{l} = \hat{d}$ 、右側で $\hat{l} = -\hat{d}$ となっていて、中央の影付きの部分で相対的に回転している。後述の composite soliton と似ている。)である。右側のパネルは三叉路型の domain wall の模式図。 \hat{l} が反転する domain wall (実線、l wall)と \hat{d} が反転する domain wall (破線、d wall)が途中で接合することで ld wall となる様子を示している。白丸。で表される渦は \hat{l} の domain wall 上に trap される。

この三種類の domain wall 自体も容器表面の粗さによって pinning され、非常に安定に存在しう るため、結果、渦に対する安定な pinning site として働くことになる。これに対し、domain wall の 存在しない "uniform" texture では渦に対する pinning も無いため、"trained"に比べて Ω_p が圧倒 的に小さくなり、weak pinnning の状況になっているということである。domain wall 間の距離はお およそ slab の厚みと同程度になると彼らは考えているようで、すなわちこの場合数百ミクロン程度 である。R = 5.0 mm であるため、渦の平均間隔が 1 mm の場合に全体の渦の個数 $N_{\text{trap}} = 62$ とな り、このとき $\Omega_0 = 0.026$ rad/s に対応する。これは実験結果の Ω_0 とほぼ同じであるから、trap さ れている渦の数に対して pinning site の数は十分あることになる。

また、uniform な texture の場合は、量子渦が発生する臨界速度が $v_c \sim 0.5$ mm/s である [44] 一方、 \hat{l} の domain wall が存在する場合、あるモデルによる計算 [45] では $v_c \sim 0.15$ -0.25 mm/s と、uniform な場合よりも小さくなる。この実験においては、図 2.19 から "uniform" texture の時 D = 0.26 mm のセルでは v_c が 0.48 mm/s と、uniform な場合の臨界速度と一致していると言って もいいが、D = 0.26 mm のセルではそれよりも小さく見える。また、図 2.18 の "trained"な場合で は $v_c = 0.15$ mm/s となっていて、domain wall がある時のモデル計算と一致していると言える。た だしこのモデル計算は一次元の texture を仮定し、壁による影響も考慮にいれていないかなり単純な モデルであるため、現実の系をどこまで説明できているかは疑問である。とはいえ、"trained"の場 合になんらかの domain wall が存在しているという点は信憑性が高いと考えている。

2.3.4 remaining problem

以上では、超流動³He-A における面欠陥 (soliton) あるいは chiral domain wall に関する実験的 研究について紹介した。これらの実験、またその他の実験について共通しているのは、根本的にある 種の欠陥が実験領域に存在するか、その数がどの程度かを調べることしかできていないという点であ る。つまり欠陥が試料の何処にあるか、その形状や大きさはどうなっているのかを実験的に直接明ら かにする方法はこれまで無かったのである。しかし、欠陥の生成消滅過程や、相互作用について研究 を進めるためにはその空間分布の情報が不可欠であり、それを可能にする実験手法の開発が長年の課 題であった。我々はそれを NMR 技術を応用した MRI の手法によって実現させた。以下ではその詳 細について解説する。

3 NMR measurement

3.1 pulsed-NMR

核磁気共鳴(Nuclear Magnetic Resonance, NMR)は原子の核スピンに外部から静磁場を印加し ておき、その静磁場の大きさに比例した周波数でスピンが歳差運動するのを観測する実験方法であ る。主に時間的に連続な振動磁場を与え続け、その共鳴吸収を測定する cw-NMR と、短時間の強い 振動磁場を与えた後、スピンから放出される振動磁場を観測する pulsed-NMR に大別される。本論 文での研究には専ら pulsed-NMR を用いたため、そちらについて述べる。

3.1.1 Bloch equations

外部磁場中にあるスピンの運動に対して、Zeeman エネルギーのみを考えると以下のような Hamiltonian が与えられる。

$$\mathcal{H}_{\rm B} = -\gamma \boldsymbol{S} \cdot \boldsymbol{H},\tag{3.1}$$

ここで S はスピン演算子、H は磁場である。この Hamiltonian とスピン S の交換関係から Heisenberg 方程式が導けて、

$$\dot{\boldsymbol{S}} = -i\frac{1}{\hbar}[\boldsymbol{S}, -\gamma \boldsymbol{S} \cdot \boldsymbol{H}]$$

= $\gamma \boldsymbol{S} \times \boldsymbol{H}$ (3.2)

となる。比例係数 γ は磁気回転比 (gyro magnetic ratio) と呼ばれ、粒子の種類に固有であり、³He 原子核の場合約 32.43MHz/T である [1, p.490]。実際になんらかの物質に対して NMR を行う場合、 スピンの運動は巨視的なサイズの試料に亘って平均されることになり、すなわちスピン S を磁化 Mで置き換えた、

$$\dot{\boldsymbol{M}} = \gamma \boldsymbol{M} \times \boldsymbol{H} \tag{3.3}$$

が磁化の運動方程式として得られる。この方程式では M は外部磁場 H に比例する角周波数 $\omega_{\rm L} = \gamma |H|$ で回転する。この $\omega_{\rm L}$ を Larmor 周波数と呼ぶ。慣例的に磁場の方向は z 方向と置かれ る。以下では現象論的な緩和による信号の減衰を考える。普通熱平衡状態では磁化は z 方向を向いて おり

$$\boldsymbol{M} = \begin{pmatrix} 0\\0\\M_0 \end{pmatrix} \tag{3.4}$$

と書ける。運動方程式に現象論的な緩和の効果を取り入れた、

$$\frac{dM_x(t)}{dt} = \gamma \left[\boldsymbol{M}(t) \times \boldsymbol{H}(t) \right]_x - \frac{M_x(t)}{T_2}
\frac{dM_y(t)}{dt} = \gamma \left[\boldsymbol{M}(t) \times \boldsymbol{H}(t) \right]_y - \frac{M_y(t)}{T_2}
\frac{dM_z(t)}{dt} = \gamma \left[\boldsymbol{M}(t) \times \boldsymbol{H}(t) \right]_z - \frac{M_z(t) - M_0}{T_1}$$
(3.5)

という成分毎の運動方程式を Bloch 方程式と呼ぶ。Bloch 方程式に従う運動では、z 方向の成分(縦磁化)は熱平衡での大きさ M_0 に向かって時定数 T_1 の指数関数で復元していく。 T_1 は、励起されたスピン系のエネルギーがスピン系の外へ逃げていく時間を表していることになる。また x - y 平面での磁化の成分(横磁化)は ω_L で回転しながら、その大きさが時定数 T_2 の指数関数で減衰する。この T_2 は、スピン間の相互作用で、各スピンの磁気モーメントがコヒーレンスを失う時間であると考えられる。原理的に $T_2 < T_1$ である。

3.1.2 FID

pulsed-NMR では、共鳴周波数の振動磁場を短時間与えることによって、磁化を熱平衡から励起する。この短い振動磁場を励起パルスと呼び、その影響によって理想的には磁化は同じ大きさのまま z軸方向から傾けられる。この傾ける角度を tip 角と呼び、例えば 90 度 (π rad) 傾けるパルスのことを 90°-パルス (π -パルス) などと言い表す。tip 角が ϕ のとき、横磁化の振動は

$$M_x(t) + iM_y(t) = M_0 \sin\phi \exp(i\omega_{\rm L} t) \exp\left(-\frac{t}{T_2}\right)$$
(3.6)

のように表せる。実験的にはこの歳差運動は資料の周囲に置かれたコイルに生じる誘導起電力として 観測される。

ところで、実際にスピン間の相互作用の大きさによって決まる時定数である T_2 がこのような減衰 として直接観測されるとは限らない。というのは、外部から印加されている磁場が完全に均一では ないため、 ω_L が空間的に異なることにより、信号は T_2 よりも随分速く減衰してしまうからである。 このような外部磁場の不均一によって定まる減衰の時定数を物理的に意味のある T_2 と区別して特に T_2^* と書くことが多い。特に液体 ³He では物質そのものによる緩和が非常に遅いため、基本的には常 に T_2^* での信号の減衰が見えていると考えられる。この励起パルスの直後に観測される T_2^* での減衰 を、自由誘導減衰(Free Induction Decay, FID)と呼ぶ。FID は Fourier 変換して周波数空間での スペクトルにすると、磁場の大きさの分布を表すことになる。

このような磁場の不均一によるコヒーレンスの喪失は複数の励起パルスを用いてスピンエコーを出 す方法により回復することができるが、今回の研究では利用していない。

3.2 Phase Sensitive Detection

NMR の信号(FID, spin echo)は共鳴周波数で振動する誘導起電力として、サンプルの周囲に巻かれたコイルで検出される。極めて単純化してただの正弦波とすると

$$S(t) = S_0 \sin \omega t \tag{3.7}$$

と表せる。これは、実験的にはある参照周波数 ω_{ref} との差の周波数 $\omega - \omega_{ref}$ を持つ信号に変換されて記録される。実際には mixer 回路によって S(t) に $\sin \omega_{ref}t$, $\cos \omega_{ref}t$ の信号を掛け算することで

$$S_R(t) = S(t)\sin\omega_{\rm ref}t\tag{3.8}$$

$$= \frac{1}{2} S_0 \left[\cos(\omega - \omega_{\rm ref}) - \cos(\omega + \omega_{\rm ref}) \right]$$
(3.9)

$$S_I(t) = S(t) \cos \omega_{\rm ref} t \tag{3.10}$$

$$= \frac{1}{2}S_0\left[\sin(\omega - \omega_{\rm ref}) + \sin(\omega + \omega_{\rm ref})\right]$$
(3.11)

と変換される。 ω_{ref} は共鳴周波数 ω に非常に近い周波数を用いるため、、($\omega + \omega_{ref}$)は ($\omega - \omega_{ref}$)に 比べて圧倒的に大きい周波数となるため、アナログまたはデジタルのローパスフィルタによって消す ことができ、結局

$$S_R(t) \propto \cos(\omega - \omega_{\rm ref})$$
 (3.12)

$$S_I(t) \propto \sin(\omega - \omega_{\rm ref})$$
 (3.13)

という形に変換される。元のωよりも遥かに低い周波数に変換できる(元の周波数は1 MH から数 GHz で、これを 10 kHz 以下にできる)ため、パルス NMR では普通この方法で変換された信号を コンピュータに取り込んで解析する。この方法を Phase Sensitive Detection、通称 PSD 検波と呼 ぶ。この操作は周波数に対して線型なので、単純な正弦波でない信号に対して PSD 検波を行うこと は、Fourier 変換した周波数空間で単純に ω_{ref} 分の平行移動をすることに対応する。また、物理的に は観測している実験室系から ω_{ref} で回転する回転系に移ってスピンの運動を考えることに対応する。 以下では特に断りの無い限り、PSD 検波した後の周波数に対して議論する。

3.3 MRI

FID の信号 F(t) は空間的に異なる共鳴周波数の分布を重ね合わせたものである。すると、FID を Fourier 変換して得られるスペクトルは、周波数分布を表す。

$$F(t) = \int \rho(\omega) e^{-i\omega t} d\omega \qquad (3.14)$$

$$\Leftrightarrow \tilde{F}(\omega) = \int F(t)e^{i\omega t}dt = \rho(\omega)$$
(3.15)

なお、本来 Fourier 変換と逆 Fourier 変換を繰り返すと、 2π の係数が現れるが、本質的でないので無 視する。式 3.15 のように FID を Fourier 変換すると周波数空間でのスピンの分布 $\rho(\omega)$ そのものに なる。このことを利用して、積極的に空間変化する磁場をかけることでスピンの空間分布をスペクト ルの形で取り出す方法を Magnetic Resonance Imaging (MRI) と呼ぶ。MRI 測定を行うためには 均一な静磁場 $H_0 = (0, 0, H_{z0})$ に加えて線形磁場勾配 G を印加する。

$$\boldsymbol{G} = \nabla H_z \tag{3.16}$$

$$H_z = H_{z0} + \boldsymbol{G} \cdot \boldsymbol{r} \tag{3.17}$$

例えば $G = G_x \hat{x}$ のとき $\omega = \gamma (H_{z0} + G_x x)$ になるから FID を Fourier 変換して得られたスペクト ルは、周波数軸を実空間の x と読み替えることができて、つまり実空間でのスピン密度分布 $\rho(\mathbf{r})$ の x 方向への投影を表す。非常に単純なこの測定であるが、一次元の MRI と呼ぶこともできる。多次 元での MRI を考えるために、 $\rho(\mathbf{r})$ を座標について Fourier 変換した波数空間での分布 $\tilde{\rho}(\mathbf{k})$ を書い てみると

$$\tilde{\rho}(\boldsymbol{k}) = \int \rho(\boldsymbol{r}) e^{-i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}} d^3\boldsymbol{r}$$
(3.18)

となっている。一方、ある磁場勾配 G をかけた状態での FID は

$$F(t) = \int \rho(\omega)\delta\left(\omega - \gamma(H_{z0} + \boldsymbol{G} \cdot \boldsymbol{r})\right) d\omega d^{3}\boldsymbol{r}$$
(3.19)

$$=e^{i\gamma H_{z0}t}\int\rho(\boldsymbol{r})e^{-i\gamma\boldsymbol{G}\cdot\boldsymbol{r}t}d^{3}\boldsymbol{r}$$
(3.20)

であるから、 周波数 γH_{z0} での回転、言い換えれば周波数空間での γH_{z0} の平行移動を除けば式 (3.18) と (3.20) は同じ形の式である。 $\mathbf{k} \to \gamma t \mathbf{G}$ とすれば完全に一致する。これはつまりある方向へ \mathbf{G} をかけて得られた FID が、波数空間での $\mathbf{k} = 0$ を通り同じ方向を持つ直線上のスピン分布を一致 しているということになる。これは多次元の MRI の基本原理である [46]

主に医療用に実用化されている MRI 装置では磁場勾配をパルス的に与えることでスピンエコーを 出し、必要な波数空間での格子点上の離散データを直接得て、それを多次元 Fourier 変換することで 実空間での画像を得ているものが多い [46]。しかしながら超流動 ³He のような超低温の試料に対し てパルス磁場勾配を用いると、eddy current heating が問題になる。その上、特に超流動 ³He では 多くの非線形現象が見られるため [33]、スピンエコーではうまく測定ができない。そこで、佐々木ら は定常磁場勾配を用いた方法により超低温の試料に対して多次元 MRI 測定を可能にするシステムを 開発した [28–31]。この方法ではある方向に *G* にかけて FID を取得、僅かに方向を変えてまた取得 ということを繰り返して、二次元ないし三次元での波数空間でのデータを得る。詳しいデータ処理の 方法については後述する(4節)。

3.4 MRSI

MRI は均一磁場下でのスペクトルが理想的なデルタ関数になっているとき、周波数と実空間での 位置が完全に対応する。実際の系では、磁場の残留不均一性や試料の intrinsic な周波数分布や緩和 (T_2 に対応)によって G をかけていないときでもスペクトルは有限の線幅を持っている。また、特 に超流動 ³He においては、不均一な texture によって共鳴周波数が空間変化することが知られてい る。このような spectroscopic は情報は、物理的には非常に重要なことが多いが、空間分解を目的と した単純な MRI においては障害である。ただしその緩和によって MRI 画像にコントラストがつく。 MRI の空間分解能 Δx^{res} は印加した G と元の(均一磁場での)線幅 Γ で

$$\Delta x^{\text{res}} = \frac{\Gamma}{\gamma |\boldsymbol{G}|} \tag{3.21}$$

と表せる。元の線幅を上回る周波数の差が生じたときに別の位置にあることがわかるというイメージがわかりやすい。但しこれは最悪の条件であって、実際にはもっと良く見えることが多い。ともあれ、MRI 測定では NMR の spectroscopic な情報が失われてしまう。そこで、我々は超低温での核磁気共鳴分光映像化法(ultra low temperature Magnetic Resonance Spectroscopic Imaging, ult-MRSI)を開発した [47], [48]。この方法では、磁場勾配 G の方向に加えて大きさも変化させた多数のデータを取得し、Fourier 変換を駆使することで実空間 r に周波数を加えた、最大4次元でのNMR 信号の分布 $\rho(r, \omega)$ を原理的には得ることができる。こちらも詳しいデータ解析の方法は後述するが、Fourier 変換を用いた解析の手順は以下に示すとおりである。あらゆる G での FID のデータを F(G, t) とすると

$$F(\boldsymbol{G},t) = \int \rho(\boldsymbol{r},\omega) e^{-i\omega t} e^{-i\gamma \boldsymbol{G}\cdot\boldsymbol{r}t} dt d^{3}\boldsymbol{r}$$
(3.22)

と書ける。これを G で(多次元)Fourier 変換すると

$$\tilde{F}(\boldsymbol{k}_{G},t) = \int \rho(\boldsymbol{r},\omega)e^{-i\omega t}e^{-i\gamma\boldsymbol{G}\cdot\boldsymbol{r}t}e^{i\boldsymbol{k}_{G}\cdot\boldsymbol{G}}d\omega d^{3}\boldsymbol{r}d^{3}\boldsymbol{G}$$
(3.23)

$$= \int \rho(\boldsymbol{r},\omega) e^{-i\omega t} e^{-i\boldsymbol{G}\cdot(\gamma t\boldsymbol{r}-\boldsymbol{k}_G)} d\omega d^3 \boldsymbol{r} d^3 \boldsymbol{G}$$
(3.24)

$$= \int \rho(\mathbf{r}, \omega) e^{-i\omega t} \delta(\gamma t \mathbf{r} - \mathbf{k}_G) d\omega d^3 \mathbf{r}$$
(3.25)

$$=\frac{1}{|\gamma t|}\int \rho\left(\frac{\mathbf{k}_G}{\gamma t},\omega\right)e^{-i\omega t}d\omega$$
(3.26)

と変形できる。すると

$$\rho\left(\frac{\boldsymbol{k}_{G}}{\gamma t},\omega\right) = \int |\gamma t| \tilde{F}\left(\boldsymbol{k}_{G},t\right) e^{i\omega t} dt \qquad (3.27)$$

と t で Fourier 変換すれば ρ が得られる。あとは $\frac{k_G}{\gamma t} \rightarrow r$ とする置き換えを行ってやることで $\rho(\mathbf{r},t)$ となる。

4 Data analysis

NMR の章で導いたような Fourier 変換による解析手法は、完全に数学的な表式である。つまり連 続、無限の関数に対して成り立つものである。実験で得られるデータはコンピュータで扱われる離散 的で有限の範囲しか無い数列であるから、当然扱い方に注意しなければならない。とはいえ、正しく 離散 Fourier 変換を行えば連続的な解析手法と同じ関係が基本的には成り立つ。この章では、そのよ うなデータの解析方法について解説する。

4.1 Fourier transformation

FID や spin echo の NMR 信号は、h(t) という時間領域のデータとして得られるが、これを Fourier 変換した周波数領域でのスペクトル H(f) という形で考えたい場合が多い。f は周波数であり、通常 は単位として Hz が用いられる。角振動数 ω とは $\omega = 2\pi f$ の関係がある。h(t), H(f) 共に複素数で ある。Fourier 変換は通常

$$H(f) = \int_{-\infty}^{\infty} h(t)e^{2\pi i f t}dt$$
(4.1)

$$h(t) = \int_{-\infty}^{\infty} H(f) e^{-2\pi i f t} df$$
(4.2)

で定義される。余分な係数 2π が現れないことと、実験的に用いる単位として Hz がわかりやすいため、以下では ω でなく f を用いる。Fourier 変換で繋がる h(t), H(f) には、一般的に以下の性質がある。[49]

h(t) が実数	\Leftrightarrow	H(-f)	=	$H^*(f)$	
h(t)が虚数	\Leftrightarrow	H(-f)	=	$-H^*(f)$	
h(t)が偶関数	\Leftrightarrow	H(-f)	=	H(f)	(H(f)は偶関数)
h(t) が奇関数	\Leftrightarrow	H(-f)	=	-H(f)	(H(f)は奇関数)

さらに、以下の関係が成り立つことが知られている。記号 ↔ はお互いに Fourier 変換で移り合うこ とを表している。

h(t)	\leftrightarrow	H(f)
h(at)	\leftrightarrow	$\frac{1}{ a }H\left(\frac{f}{a}\right)$
$\frac{1}{ b }h\left(\frac{t}{b}\right)$	\leftrightarrow	H(bf)
$h(t-t_0)$	\leftrightarrow	$H(f)e^{2\pi i f t_0}$
$h(t)e^{-2\pi i f_0 t}$	\leftrightarrow	$H(f - f_0)$

2つの関数 g(t), h(t) のたたみこみ (convolution) g * h は以下で定義される。

$$(g*h)(t) = \int_{-\infty}^{\infty} g(\tau)h(t-\tau)d\tau$$
(4.3)

この Fourier 変換は g(t), h(t) の Fourier 変換 G(f), H(f) の掛け算となる。(たたみこみ定理)

$$(g * h)(t) \leftrightarrow G(f)H(f)$$
 (4.4)

4.2 Nyquist frequency

普通コンピュータで扱う実験データは離散化されて得られる。つまり本来あったであろう連続関数 h(t) が、ある時間間隔 Δ で標本化された

$$h_k = h(k\Delta), \qquad k = \cdots, -3, -2, -1, 0, 1, 2, 3, \cdots$$
(4.5)

という数列の形になる。時間間隔 Δ の逆数を sampling rate と呼ぶ。たとえば $\Delta = 1 \ \mu s$ のとき、 sampling rate は 1 MHz と言える。また、

$$f_{\rm c} = \frac{1}{2\Delta} \tag{4.6}$$

を Nyquist 周波数と言う。この Nyquist 周波数は以下のように離散 Fourier 変換で最も重要な周波 数である。

■標本化定理 h(t)の周波数帯域が f_c より小さい周波数に限定されているとき、つまり H(f) が任 意の $f: |f| \ge f_c$ に対して H(f) = 0 であるならば、元の h(t) は標本 h_k によって完全に決定される。

あるいは逆に h(t) が f_c より大きな周波数を含んでいるとき、その成分は H(f) の $-f_c < f < f_c$ の範囲内に折り返されて現れ、本来の f_c 以下の信号と区別できない。これを aliasing と呼ぶ。逆に 言えば、信号が持っている周波数帯域よりも十分に大きな sampling rate でデータを標本化すれば離 散データから正しいスペクトル H(f) をつくることができる。

4.3 Discrete Fourier transformation

有限個の(離散化された)標本点

$$h_k \equiv h(t_k), \qquad t_k \equiv k\Delta, \quad k = 0, 1, 2, \cdots, N-1$$

$$(4.7)$$

とする。この N 個の点から、h(t) の fourier 変換 H(f) を推定することを考える。なお簡単のため N は偶数であるとしておく。N 個の入力点から得られる独立な出力は最大 N 個であるから、

$$f_n \equiv \frac{n}{N\Delta}, \qquad n = -\frac{N}{2}, \cdots, \frac{N}{2} - 1 \tag{4.8}$$

なる周波数 f_n での関数値 $H(f_n)$ を求めることになる。 f_n の端の値は

$$f_{N/2} = \frac{1}{N\Delta} \cdot \frac{N}{2} = \frac{1}{2\Delta} = f_{\rm c} \tag{4.9}$$

であって、Nyquist 周波数になっている。あとは積分で定義された Fourier 変換 (4.1) を級数に置き 換えて

$$H(f_n) = \int_{-\infty}^{\infty} h(t)e^{2\pi i f_n t} dt$$

$$\rightarrow \sum_{k=0}^{N-1} h_k e^{2\pi i f_n t_k} \Delta$$

$$= \Delta \sum_{k=0}^{N-1} h_k e^{\frac{2\pi i k n}{N}}$$
(4.10)

とすれば離散 Fourier 変換

$$H_n = \sum_{k=0}^{N-1} h_k e^{2\pi i k n/N}$$
(4.11)

が導かれる。ここで式 (4.11) を見ると明らかなように、 H_n は n の値に対して周期 N の周期関数になっている。つまり $H_{-n} = H_{N-m}$ であるから、n の変化する領域のうち $-N/2, \dots, -1$ を $N/2, \dots, N-1$ に平行移動して n = N/2 - 1 の後ろにくっつけることで $n = 0, 1, \dots, N-1$ と定義し直すことができる。こうすると k, n は共に 0 から N-1 の範囲を取ることになる。この場合、正の周波数 $0 \le f \le f_c$ は $0 \le n \le N/2$ に、負の周波数 $-f_c \le f < 0$ は $N/2 \le n \le N-1$ に対応する。なお、n = N/2 は $f = f_c$ と $f = -f_c$ の両方に対応している。

実際にコンピュータで計算する場合は高速 Fourier 変換 (FFT) と呼ばれるよく知られたアルゴリズムを用いているがこのアルゴリズムの詳細についてはここでは説明しない。([49] 参照)

4.4 Fourier transformation of FID

FID はパルスによって励起された信号が減衰する信号である。これは周期性を仮定する FFT にお いては $n = 0 \ge n = N - 1$ の間で (つまり t = 0で) 不連続なデータとなっている。言い換えると、 図 4.1 に示したような time domain での完全なデータである spin echo の、 $t \ge 0$ の部分に相当する 半分のデータしか原理的に存在しないことになる。



図 4.1 典型的なスピンエコーの様子。赤い破線は PSD 検波後の実部信号、青い一点鎖線が虚部 を示しており、黒い実線はその絶対値である。FID ではこの $t \ge 0$ の部分のみが観測されている と思える。 数学的に考えれば、これは本来の信号 h(t) にステップ関数 $\theta(t)$

$$\theta(t) = \begin{cases} 1 & t \ge 0\\ 0 & t < 0 \end{cases}$$
(4.12)

を掛け算していることに相当する。すると frequency domain では $\theta(t)$ の Fourier 変換

$$\Theta(f) = \frac{1}{2}\delta(f) + \frac{i}{2\pi} \text{v.p.}\left(\frac{1}{f}\right)$$
(4.13)

を畳み込むことになる [50, p.274](v.p. は主値積分を表している)。式 (4.13) を見ると、明らかに実 部と虚部が分離されて書けており、かつ実部はデルタ関数になっているため、ある実関数 *H*(*f*) に Θ をたたみこむと

$$(H * \Theta) = \int H(\phi)\Theta(f - \phi)d\phi$$

= $\frac{1}{2} \int H(\phi)\delta(f - \phi)d\phi + \frac{i}{2\pi} \int H(\phi)v.p.\left(\frac{1}{f - \phi}\right)d\phi$
= $\frac{1}{2}H(f) + \frac{i}{2\pi}$ [Real Function] (4.14)

となる。すなわち、 $\Theta(f)$ をたたみこんでも実部は 1/2 の係数がつくだけで元の関数と全く同じである。虚部は元々ゼロだったはずなので無視してゼロとすればよい。つまり、Fourier 変換 H(f) が実関数であることがわかっている関数 f(t) は、t < 0 での情報を全く失ってしまっても、正しいスペクトルが再現できることがわかる。

一方、H(f)が real であるということは、パルス NMR においては、パルスを撃った瞬間である t = 0で全てのスピン(磁化)の歳差運動の位相が揃っていることに対応する。これは周波数分布に 比べて十分に広いバンド幅を持つ(言い換えれば FID の緩和時間 T_2^* より十分短い時間幅の)パル スによって励起する場合、近似的に達成されている。以上のことから、FID を用いても正しいスペク トルが再現できることがわかる。

ただし、FID を使う場合にはもうひとつ注意しなければならない点がある。十分短い時間幅で励起パルスを使う必要があるため、それに反比例して大きな励起磁場を RF コイルで発生させる必要がある。その巨大な励起信号が受信側の回路・プリアンプに漏れ込むことを完全に防ぐことは難しい。 受信側でも一般的な LC 共鳴回路を用いているため、パルス信号の ringing が残っているうちは、より微弱な試料からの信号を覆い隠してしまうだけでなく、普通は増幅器が大電圧を入力されてからしばらくは正しく信号を増幅しない。このような NMR 信号が正しく計測できない時間を dead time と呼んでいるが、短くとも 10 μ s 程度は存在する。すなわち dead time τ_{dead} とすると、t = 0 から $t = \tau_{dead}$ の間は artificial な正しくないデータしか得られない。そこで、この dead time 中のデータを用いずに Fourier 変換を行うため、以下のような方法を用いた。すなわち、データをデジタイザーで収録する時には τ_{d} より十分速く sampling していても、Fourier 変換を計算するときには敢えてより粗く、 $\Delta > \tau_{dead}$ となるように sampling し直す(図 4.2)。もともと収録した点のうち、かなりの部分をとばしてしまうということである。これによって、データが崩れてしまっている時間はそもそも使わないため、スペクトルは正しく再現することができる。このとき t = 0 のデータ (h_0) は本来必要だが、どうしても正しい値は存在しない。しかしながら、スペクトル H_n に対する h_0 の寄与を考えると、

$$H_n^{k=0} = h_0 e^{2\pi i \cdot 0 \cdot n} = k_0 \qquad \dots \text{ independent of } n \tag{4.15}$$

であって、*n* に依存しない。これは言い換えれば、*h*₀ の値が変化したとき *H_n* に定数が足されて平 行移動するということである。(図 4.3) 信号の周波数帯域が Nyquist 周波数より小さい領域に収まっ



図 4.2 Δ での resampling の模式図。本来は十分細かく sampling してある離散データを、dead time を含まないように $\Delta > \tau_{dead}$ で sampling し直す。



図 4.3 h_0 による H_n の平行移動。 h_0 の値が変わっても、 H_n はその分平行移動するだけである。

ている場合、 $H(f_c)$ はゼロになるべきである。なので h_0 が正しくない信号を Fourier 変換したスペクトルを、offset を引いてスペクトルの両端がゼロになるように合わせることで正しいスペクトルが 復元できることになる。

但し、当然ながら Nyquist 周波数は新たに取り直した sampling 時間 Δ によって $f_c = 1/2\Delta$ となる。逆に言えば、dead time の長さで測定可能な周波数帯域が制限される。

4.5 Adjustment of NMR signal

4.5.1 Adjustment of Receiver

PSD 検波を行う場合、理想的には振幅が全く等しく、かつ位相がちょうど $\pi/2$ だけずれた二つの 正弦波を試料からの NMR 信号に掛け算する。しかし、普通アナログ回路で行うこの掛け算は、現実 には二つの信号(複素数の実部と虚部に対応する)の間で僅かに増幅率が異なったり、位相が $\pi/2$ か らずれていたりする。解析の際にはこのようなアンバランスを補正する必要がある。そこで、事前に 発振器から綺麗な正弦波を出力したものを、実際に検波しておく。それで得られた信号は単純な正弦 波になるべきであるから、 $A\sin(Bt + C) + D$ という関数型で fitting しておき、アンバランスのパ ラメータを把握して、その数字を使って実験で得られた信号を補正した。

4.5.2 Sampling by Δ

収録した信号を $\Delta > \tau_{dead}$ で sampling し直す際、単純にその時間 $n\Delta$ にある値を取り出すのは 得策ではない。せっかく本来測定で得ていた情報の大部分を捨てることになるからである。言い換 えれば、S/N 比を著しく損していることになる。収録の sampling 間隔 Δ_0 と新たな sampling 間隔 $\Delta = N_1\Delta_0 > \tau_{dead}$ とする。元々 Δ_0 での sampling のために filtering を行って、 $1/2\Delta_0$ より大き な周波数の信号は落としてある。逆に言えば、 $1/2\Delta_0 = f_c^0$ 以内のノイズは全て残っており、全て 使って fourier 変換した場合は $-f_c^0 < f < f_c^0$ に広く分布していたはずである。これを単純に N_1 個に一つの点を使って Fourier 変換した場合、 $f_c = 1/2\Delta$ とすると全て $-f_c < f < f_c$ の範囲に折 り返して乗ってくる。これはスペクトルの S/N が $\sqrt{N_1}$ 倍悪くなることを示している。要は新たな sampling のためにより厳しい filtering を行うべきなのである。

この filtering としては、まず単純に Δ_0 の sampling のまま一旦 Fourier 変換して、 f_c より外側の 成分は全てカットしてから逆 Fourier 変換するという方法が考えられる。しかし $t < \tau_{dead}$ での信号 は崩れていることを思い出すと、このやり方は正しい結果を生まないことが明らかである。そこで、 time domain の状態で filtering することにした。

新たに sampling される Δ 刻みの点 $t = n\Delta$ の周辺、典型的には N_1 個の元の点を低次(2次又 は 3 次)の多項式で fitting し、その近似式の $t = n\Delta$ での値を採用することにした。これは実際 バンドカットとほとんど同じ効果を与える。これによって S/N を損することなく、ゆっくりした sampling にすることができる。ところで注意しなければならないのは、 $t = \Delta$ (k = 1)の点である。 $\Delta = N_1\Delta_0$ はほとんどの場合、多少の余裕は持たせるものの、 τ_{dead} になるべく近く設定するので、 $t = \Delta$ の前後の点を用いると、一部が dead time にかかってしまう。そこで、 $k \ge 2$ の点では図 4.4(a)のように前後の点を使って fitting したが、k = 1の点だけは図 4.4(b)のように時間的に後の 点だけを使って fitting した。



(a)

図 4.4 Fitting による時間ドメインでの noise filtering。(a) $k \ge 2$ での fitting の例。データと して用いる時刻の前後でのデータ(赤い●)を二次関数で fitting したものが青い実線で、その関 数の中心座標での値が緑の ■ である。これがこの時刻での新しいデータとなる。(b) k = 1 での fitting の例。k = 1 では、それより前の時間におけるデータは崩れているかもしれないので用い ず、時間的に後ろの点だけを用いて fitting し、その関数の k = 1 に対応する時刻(すなわち一番 端)の値を採用する。

4.5.3 Phase adjustment of signal

FID の Fourier 変換 H(f) が本質的には real であっても、実験上の問題によって位相がずれてい ることがある。例えば試料の周りに設置してある励起用と受信用のコイルの位置関係であるとか、途 中のケーブルやアンプでの遅延等が考えられる。これは単純に検波するときの参照信号の位相を変え れば調整できる。あるいは収録したあとでも適切な位相因子をかけるだけで補正することができる。

$$h(t) = h^0(t)e^{-i\phi_0} \tag{4.16}$$

本研究の中で、NMR スペクトルは基本的に全て上記の方法で FID を Fourier 変換して得た。 MRI,MRSIの imaging を行う場合、NMR 信号をまず time domain で扱うが、そのときも位相のズ レ等を調整する意味で一旦 Fourier 変換してスペクトルにしたものを読み込んで、逆 Fourier 変換し て用いた。このとき、FID から得たスペクトルは、実部のみを使用し、虚部は全て 0 として逆 fourier 変換した。

4.6 Analysis in imaging

imaging では、磁場勾配を印加した状態で FID を取得する。その場合に生じる諸問題について、 以下のようにさらなる補正を行った。単純のため、G を印加していない均一磁場では、理想的なデル タ関数型のスペクトルであると仮定しておく。その周波数は外部磁場 H_0 としたとき $f_L = \gamma H_0/2\pi$ であって、この周波数で検波しているとする。このとき G下ではスピン分布 $\rho(r)$ を反映した

$$h(t) = \int \rho(\mathbf{r}) e^{i\gamma \mathbf{G} \cdot \mathbf{r}t} d^3 \mathbf{r}$$
(4.17)

となる。あらゆる方向の G に対して周波数ゼロとなる空間的な位置 r = 0 は、gradient magnets が 作る磁場が全てゼロであるような点であり、この位置を磁場センターと呼ぶ。実験的には、NMR コ イルの感度が最も強い部分、あるいは測定領域の中心がこの磁場センターに一致しているのが最も都 合が良く、実際にそうなるように設計している。しかしながら加工や取り付けの精度、または冷却時

の熱収縮の具合などの事情により、往々にして磁場センターから僅かにずれる。これは単純な、磁場 センターから離れると磁場の空間変化が、理想的な分布から離れていくことだけではない影響を、特 に imaging の際に引き起こす。

imaging の空間分解能は、NMR 測定自体のノイズを度外視すれば、印加した磁場勾配の大きさに 比例する。一方掛けられる磁場勾配の最大値は Fourier 変換する際のバンド幅で制限される。言い換 えれば、G で広がったスペクトルが Nyquist 周波数を超えない程度までしか、G をかけられない。 そして Nyquist 周波数は前述の通り、Receiver の dead time で決まっている。ここで磁場センター が試料中心と大きくずれていると、G をかけることによって線幅が拡がるだけでなく、全体が大きく シフトすることになる。特に G の向きを逆方向にかけたときにシフトの方向も逆になるため、両方 の端が Nyquist 周波数に収まるようにしようとすると、G の最大値がかなり制限されてしまうこと になる。もちろん、検波する周波数を G 毎に任意に変更すれば一つずつのスペクトルは Fourier 変 換することができるが、各 G の値での位置情報のコヒーレンスが失われてしまうため、imaging が うまくいかなくなってしまう。

そこで、これを回避するため以下の方法を用いた。まず、FID のデジタイザーによる収録自体は dead time より十分速く sampling することができ、この時点では問題は生じていない。そして自分 が印加している *G* は当然既知であるから、本来磁場センターにしたかった位置(MRI 画像の中心に したい位置、試料の中心)の座標 r_{center} を用いて各 FID を

$$h(\mathbf{G}, t) \to h(\mathbf{G}, t)e^{-i\gamma \mathbf{G} \cdot \mathbf{r}_{center}t}$$

$$(4.18)$$

と既知の周波数の信号をかけることで

$$h(\boldsymbol{G},t)e^{-i\gamma\boldsymbol{G}\cdot\boldsymbol{r}_{\text{center}}t} = \int \rho(\boldsymbol{r})e^{i\gamma\boldsymbol{G}\cdot(\boldsymbol{r}-\boldsymbol{r}_{\text{center}})t}d^{3}\boldsymbol{r}$$
(4.19)

とでき、実効的に磁場センターと試料中心が一致している場合と同じ信号を得ることができる。こう した後で、 τ_{dead} より大きな Δ で sampling し直すことにより、位置のコヒーレンスを失わないまま Nyquist 周波数に収まる最大の *G* をかけることができる。

4.7 Analysis for 2D-MRI

imaging の際は、以上のようにして解析して得たスペクトル(の実部)を逆 Fourier 変換した time domain の信号を用いる。我々の MRI 法では、 $\rho(\mathbf{r})$ の波数空間での分布が図 4.5 のように放射状に 得られていることになる。



図 4.5 放射状のデータと格子点上にあるデータ。ult-MRI の測定は磁場勾配の方向を掃引しな がら FID を取得するので、波数空間でのデータは元々左のパネルのような放射状に存在してい る。これを 2D Fourier Transform するために直交座標での格子点上にあるように補間する。

この放射状の分布を k_x, k_y での格子点上のデータに変換すれば、二次元 Fourier 変換することで $\rho(\mathbf{r})$ を計算することができる。この格子点への変換では、放射状の分布を補間することで格子点上 のデータを得た。すなわち図 4.6 のように、ある点でのデータが欲しい場合、その点の周囲にある放 射状データ 16 点から双三次補間のアルゴリズム [49, p.115] を用いて計算した。



図 4.6 放射状でのデータから格子点データへの補間。求めたい *k*-座標(青い ■)の周囲に放射 状に存在する測定点 16 個から双三次補間によって求める。

4.8 Analysis for 2+1D–MRSI

Spectroscopic Imaging でも MRI と同様にスペクトルを逆 fourier 変換したデータからスタート する。但し MRI の場合とはかなり異なる G の振り方を採用している [48]。測定時間の都合から必 要な大きさの G-空間での 2 次元格子点上のデータ全てが存在することはできなかった。G = 0 付近 は細かく測定しているが、|G| が大きくなるにつれてどんどん G の刻みを粗くした。具体的には最 も細かい **G** の変化分 G₀ として

$$\begin{cases} |G_x|, |G_y| \leq 2^m G_0 = G_1 \longrightarrow \Delta G = G_0 \\ G_1 < |G_x|, |G_y| \leq 2^{m+1} G_0 = G_2 \longrightarrow \Delta G = 2G_0 \\ G_2 < |G_x|, |G_y| \leq 2^{m+2} G_0 = G_3 \longrightarrow \Delta G = 2^2 G_0 \\ \vdots & \vdots & \vdots \\ G_{k-1} < |G_x|, |G_y| \leq 2^{m+k} G_0 = G_k \longrightarrow \Delta G = 2^k G_0 \\ \vdots & \vdots \\ G_{n-m} < |G_x|, |G_y| \leq 2^n G_0 = G_{n-m+1} \longrightarrow \Delta G = 2^{n-m} G_0 \end{cases}$$
(4.20)

という密度で測定することになる。わかりにくいが、図 4.7 の黒い点のように *G* が大きい領域では 密度をどんどん半分にしていくのである。実験では n = 9, m = 3 とした。このときデータ空間は、 x, y 共に G_0 単位で-512 から 512 の 1025 点なので、データを省かずに全て測定すると 1050625 の点 が必要となる(実際に離散 Fourier 変換に必要なのは 1048576 点)。しかし上記の省き方を採用する ことでデータの総数 *N* は

$$N = (2^{m+1} + 1)^2 + (n - m) \left\{ (2^{m+1} + 1)^2 - (2^m + 1)^2 \right\}$$
(4.21)

となり、1537 点で済むことになる。

測定したデータは $h_{l,m,n}$ と表せる。lは G_x 、mは G_y 、nはtにそれぞれ対応した番号である。但 し、存在する点は $l,m = -512, -448, -384, \cdots, 448, 512$ と $n = -1024, -1023, \cdots, 1023$ である。 このG空間でのいわば変則的な格子点上に存在するデータをG空間で 2 次元 Fourier 変換するため に、一旦補間する。(図 4.7) この補間は近接 4 点での双一次補間を用いた。これは全てのt = -定でのGの二次元空間でそれぞれ行う。これで $l,m = -512, -511, \cdots, 511, 512$ となる。次にGで 二次元 Fourier 変換した。これは単純な離散 Fourier 変換である。

$$H_{l',m',n} = \sum_{l,m=-512}^{+511} h_{l,m,n} e^{2\pi i (ll' + mm')/1024}$$
(4.22)

次は scaling $\mathbf{r} = \mathbf{k}_G / |\gamma t|$ によって \mathbf{k}_G を位置 \mathbf{r} に変換する。まずある基準となる時間 $t_0 = n_0 \Delta$ を 任意に定め、

$$\rho_{l'',m'',n} = \frac{n}{n_0} H_{l''\frac{n_0}{n},m''\frac{n_0}{n},n}$$
(4.23)

とする。この時、当然 $(l''n_0/n), (m''n_0/n)$ は一般に整数でないので元の数列に無いから、近傍の l', m' での値で双一次補間する。すなわち、その数を超えない最大の整数 l_1, m_1 、

$$l_1 \le l'' \frac{n_0}{n} < l_1 + 1 \tag{4.24}$$

$$m_1 \le m'' \frac{n_0}{n} < m_1 + 1 \tag{4.25}$$

を用いて

$$H_{\frac{l''n_0}{n},\frac{m''n_0}{n},n} = \left(1 - \frac{l''n_0}{n} + l_1\right) \left(1 - \frac{m''n_0}{n} + m_1\right) H_{l_1,m_1,n} \\ + \left(\frac{l''n_0}{n} - l_1\right) \left(1 - \frac{m''n_0}{n} + m_1\right) H_{l_1+1,m_1,n} \\ + \left(1 - \frac{l''n_0}{n} - l_1\right) \left(\frac{m''n_0}{n} - m_1\right) H_{l_1,m_1+1,n} \\ + \left(\frac{l''n_0}{n} - l_1\right) \left(\frac{m''n_0}{n} - m_1\right) H_{l_1+1,m_1+1,n}$$
(4.26)



図 4.7 **G** 空間での補間 ($\mathbf{G} = 0$ 付近)。黒い \bullet は測定して存在する点であり、これを補間して赤 い \blacksquare を作る。図の外側も密度が半分になることを繰り返しつつ必要な範囲まで広がっている。

と定義する。但し、この時明らかに *t* = 0 ⇔ *n* = 0 のデータは全てゼロになってしまう。しかし、 4.4 節で用いた方法と同様、Fourier 変換してスペクトルを作った後、offset をゼロに合わせる方法で 補正できる。

この $\rho_{l'',m'',n}$ は l'' が x、m'' が y、そして n が時間 t にそれぞれ対応する、局所的な spin echo と でも呼ぶべきデータになっている。最後にこれを時間で Fourier 変換することで、局所スペクトルが 得られることになる。

$$R_{l'',m'',n'} = \sum_{n=-1024}^{1023} \rho_{l'',m'',n} e^{2\pi i n n'/2048}$$
(4.27)

5 Experiments and Results

5.1 Experimental Devices

5.1.1 Refrigerator

試料の冷却には一般的な希釈冷凍機と核断熱消磁冷凍機を組み合わせた冷凍機を用いた。希釈冷 凍機は米国の S.H.E. CORPORATION 製 MODEL 337 希釈冷凍機である。混合器の冷却力は温度 30mK で約 10μW、最低温度は約 9mK であった。冷凍機全体は真空容器に入っており、真空容器ご と液体 ⁴He のバスに浸かった状態で運転するため、定期的に蒸発する液体 ⁴He をトランスファーし て継ぎ足す必要があった。液体 ⁴He が入っている断熱容器(dewar)は液体窒素ジャケットを備えて おり、幾分液体 ⁴He の蒸発が抑えられているものの、断熱消磁中は最長でも 40 時間に一回はトラン スファーをする必要があった。なお液体窒素のトランスファーは1週間に一度以下で十分であった。

核断熱消磁冷凍機(核ステージ)はこの希釈冷凍機に取り付けてあり、外部から強い磁場をかけた 状態で希釈冷凍機によって約10mKまで予冷する。その後超伝導体(Zn)を利用した熱スイッチに よって希釈冷凍機との熱接触を絶ち、断熱状態にする。あとは温度が外部磁場の大きさに比例するの で、必要な温度になるように磁場を下げると冷却できる。核ステージは純銅製で、有効物質量で約 32molであった。これに液体⁴Heバス中の超伝導マグネットから、最大 7.4Tの磁場を与えた。断熱 消磁中の核ステージへの熱の流入は典型的には 20nW 程度であった。最大磁場をかけた状態で 1 週 間予冷すると 10-11mK 程度に温度が下がり、そこから断熱消磁すると 3-4 週間にわたって ³He が超 流動になる 2mK 以下を維持できた。

温度測定は主に、核ステージに取り付けた³He の融解圧温度計(MCT)を用いた。これは³He の 融解圧曲線が、温度と圧力の対応として精度よく調べられているため [51,52]、固体と液体が共存す る状態を保っておくと、圧力を測定すれば温度に変換することができることに基づく温度計である。 固体/液体³He を閉じ込める容器の一つの壁が内部の圧力によって変形するように作ってある。その 変形をキャパシタの極板間距離に伝えるようにしてあり、静電容量を測定することで圧力が測定で きる。手製の MCT を、Andeen-Hagerling Inc. (Clevelad, Ohio, USA) のキャパシタンスブリッジ AH 2550A で測定した。

5.1.2 sample cell

液体³He を充填するサンプルセルの設計図を図 5.1 に示す。



図 5.1 サンプルセルの設計図 1。緑の領域には液体 ³He が溜まる。赤色は STYCAST 1266 製、 黄色はポリカーボネート製、茶色が銅製である。最も下にある灰色は熱交換器のボディである(但 し後述するようにこれも銅製である)。外側の白抜きの構造物は NMR/MRI 用のマグネットであ る。なおこの図は、A4 サイズで印刷していれば実寸大のはずである。

この設計図は中心軸で切断したときの断面図である。マグネットの中心にあたる部分には、赤色で 示したギャップ 100µm の平行平板が置いてあり、この部分の³He に対して NMR 測定を行った。平 行平板部分の材質はエポキシ樹脂 STYCAST 1266 である。ギャップの作り方は以下の通りである。 まず厚さ 100µm の平らなアルミ板 (The Nilaco Corporation, Ginza, Tokyo, Japan)を使った。こ れは株式会社ニラコ (東京、銀座)から購入したものである。この薄いアルミ板を、表面を軽く研 磨した 6mm 厚の真鍮の板に挟んで固定した。真鍮の板ごとフライス盤に固定し、エンドミルの側 面で少しずつ削ることで 2mm 幅の平行な板を作成した。この方法によって表面に大きな傷をつけ たり折り曲げることなく加工できた。なお、断面に目立ったバリなどは生じなかった。次に固めた STYCAST 1266 をフライス盤で削って、おおよそ図 5.2 の形状に加工した。STYCAST 1266 が接 着しないマイラーシートの上に 100µm のアルミ板を乗せ、図 5.2 の板の溝を被せて隙間を埋めるよ うに、固まる前の STYCAST 1266 を流し込んだ。樹脂が固まったあと、アルミ板は容易に機械的に 取り除くことができ、深さ 100µm、幅 2.0mm の溝が精度良く作れた。最後に溝の無い平らな板(厚 さ 1.0mm)を STYCAST で接着すればスラブ状のチャネルが完成する。このような作り方のため、 スラブ表面の滑らかさは元のアルミ板のそれと同程度であり、恐らく数 µm 程度の凹凸があると考え られる。また、アルミと反対側の板の表面も、一旦研磨しているが、その後 STYCAST が付着して いるので同程度の凹凸が存在するであろう。側面(幅 100µm の面)はエンドミルの刃で削られてい るので、かなり不規則であると考えられる。

平行平板以外の部分はポリカーボネート樹脂を削って作成したパーツを、やはり STYCAST 1266 で接着した。銅製の熱交換器の蓋から出てすぐにある横向きのチャンバーには、温度計として水晶振 動子(QTF)が入れてある。これは今回の実験ではほとんど活用しなかった。そのすぐ上の、長いパ スの最下部(両側)にはヒーターとして電気抵抗が設置してあり、電流を流して熱を入れることがで きる。このヒーターは抵抗率 93 Ω/m のマンガニン線を用いており、液体 ⁴He 温度(4 K)まで冷却 した状態でそれぞれ 13.2 Ω 、11.6 Ω であった。

さらにこのサンプルセルには、将来的に超流動流を生じさせる実験に用いることを想定して、いわ ゆる噴水ポンプをつけている。噴水ポンプは、超流動⁴He でよく知られた熱機械効果、または噴水 効果 [53, p.31] によって温度差から圧力差を作るポンプである。超流動³He においては噴水効果は あまり研究されていないため、うまく働くかどうかは未知数であった。実際、実験において使用して はみたが、流れが生じている証拠は見られなかったため、本研究においては全くと言っていいほど活 用していない。設計図を図 5.3 に示しておく。



図 5.2 100µm ギャップの設計図



白抜きで示した領域に液体 ³He が溜まり、青い領域にスーパーリークとして酸化アルミニウム(ア ルミナ)の粉が詰まっている。アルミナは平均粒径約 2 μ m のものを、packing factor 50% で詰め た。このスーパーリークの両側にはヒーターがあり、それぞれ 2.42 Ω、2.75 Ω の抵抗を持っていた。

熱交換器は、二つの独立したチャンバーを持つタイプのものを作成した。二つのチャンバーは噴水 ポンプを働かせるために設けた。設計図を図 5.4 に示す。



図 5.4 熱交換器

ボディ自体は銅で作った。なおボディの加工は京都大学理学研究科研究機器開発支援室の田村裕 士氏に依頼し、マシニングセンタで行った。機械加工したボディを 600-630 °C で 5 時間ほど焼き鈍 し、全面に銀を 10 μ m 程度の厚さでメッキした。各チャンバーには焼結銀を詰めた。焼結銀は、粒径 700 Å の銀粉 (ULVAC Vacuum Metallurgical co., ltd, Chigasaki, Kanagawa, Japan)を一旦 176 °C で 1 時間ほど仮焼結したものを、擦り潰して再び粉末にした。それを熱交換器のボディに少しず つ入れては、プレス機で押し固めた。packing factor は約 50% にした。その後再び本焼結を 176 °C で 10 分間行った。

ところで、焼結銀の部分は底から 6mm ほどの厚さがある。この部分はやはりバルクの銀や銅と比 べるとかなり熱伝導が悪く、バルクの部分から離れた焼結銀は熱交換に有効でない。また逆に外の表 面から遠い奥の部分は、液体ヘリウムを入れた場合の熱交換に寄与しない。つまり、焼結銀をあまり 厚く詰め込んでも熱交換器としては意味がない。そこでチャンバーの底面に直径 2.0mm の銅の棒を 埋め込んで柱のように立たせた。これは焼き鈍しの前に行った。この柱によって焼結銀全体がバルク の金属の近くにあることになる。そしてその柱の周りに焼結銀を詰め込んだ後、ところどころ焼結銀 に穴を開けて、外部からの距離を短くした。穴と柱の位置は図 5.5 に示す。



図 5.5 熱交換器の柱と穴の位置

緑の丸が柱の位置を、青の丸が穴の位置を示している。

5.1.3 NMR coils

NMR 用のコイルは平行平板部分(外形は直径 6mm の 2本の柱の間に幅 2.1mm、高さ 6.0mm の 板が渡っている)の外に巻いた。パルス NMR を行う際、励起パルスによって大きな発熱が起こるの で、その熱を逃がすため NMR コイルは核ステージではなく希釈冷凍機の混合器に熱接触させてい る。そのため、核ステージの温度になっているサンプルセル(の内部の液体 ³He)とは熱接触しない ように固定しなければならない。しかしなるべく小さいコイルを使わなければ信号が小さくなってし まうので、次のような方法で固定した。2本の柱に板の上と下でナイロンのデンタルフロスを巻きつ け、さらにデンタルフロスの糸で縛って糸を板に近づけた(図 5.6)。



図 5.6 NMR コイルの取り付け方



図 5.7 NMR コイルの写真

この糸の上から平板の中央付近にソレノイド型の受信用コイルを巻きつけた。コイルは直径 100 µm の銅線を 14 回巻きつけ、インダクタンスは 1.22 µH であった。また、単純に柱の間に渡した糸 の上に epoxy 樹脂の板を接着剤で貼り付け、それをボビンとして励起用のコイルを巻きつけた。励 起コイルは板の両側にソレノイド型を設置し、いわゆる Helmholtz 型と同じような配置になってい るが、コイルの半径は 1mm、距離が約 6mm なので正しい Helmholtz 配置にはなっていない。これ はあまり大きいコイルで励起すると、平板の中央から離れた領域(特に両脇の柱の内部)の NMR 信 号も観測されることになり、実験上の制限が大きくなることを危惧してのことであった。各コイルは 20 回ずつ巻き、インダクタンスは合わせて 1.44µH となった。以上のように、熱伝導の悪いナイロン 製の、しかも断面積の小さい糸を介してしかコイルとサンプルセルが接触していないので、コイルか ら ³He に流入する熱は十分小さいと考えられる。

5.1.4 Superconducting magnets for MRI

MRI 用の超伝導マグネットは、NMR の大きな静磁場を作るメインマグネット、MRI に用いる線 型磁場勾配を作る 3 つのグラディエントマグネット、それから Nb の筒である超伝導シールドから なっている。メインマグネットは石川らが作成したもの [54] である。約 93mT/A の磁場電流比を 持っており、約 1.5A、³He の Larmor 周波数にして 4.5MHz になる電流を流して使用した。また永 久電流スイッチを有しており、電流を流した状態で永久電流モードにすることで、磁場の減衰を観測 できない程度に抑えることができた。グラディエントマグネットは佐々木らが確立した超低温での三 次元 MRI 測定手法 [28–31] を基に尾上らが作成したものである [55]。磁場方向を z としたとき、x 方向および y 方向への磁場勾配 (G_x, G_y)をつくるマグネットは逆サドルコイルを二つ組み合わせ てあり、z 方向 (G_z) は逆 Helmholtz 型のコイルである。 G_x, G_y, G_z マグネットの磁場勾配電流比 はそれぞれ、0.15 mT/A·mm, 0.16 mT/A·mm, 0.122 mT/A·mm であった。これらには最大 1A 程 度の電流を流して使用した。超伝導シールドは Nb のシームレス管 (Shanghai Jiangxi Metals Co., Ltd., New Zone, Shanghai, China)を旋盤加工したものであった。これは外部の磁場(特に核断熱 消磁用の強磁場)の漏れ込みを防ぐ目的と同時に、マグネットが均一磁場を作るのにも役立ってい る。ところで、断熱消磁用の磁場を防ぐために、さらに外側の冷凍機の輻射シールドにも Pb のシー ルドが取り付けてある [54]。

5.1.5 NMR equipments

以下ではパルス NMR において使用した装置について説明する。全体像を図 5.8 に示す。



図 5.8 NMR 装置

まず全体の制御を行っているのは Tecmag Inc. (Houston, Texas, USA) 製の Apollo という装 置である。この装置は NMR のパルスシーケンスを自由に設定でき、任意の周波数の励起用バース ト波を作ることができる。また、前置増幅機(プリアンプ)で増幅された NMR 信号を PSD 検波 してコンピュータに取り込むことができる。さらに三方向の磁場勾配を印加する電源を制御するグ ラディエントユニットが付属しており、パルスシーケンスの任意のタイミングでパルス磁場勾配を 与えることができる。ただし本研究ではパルス磁場勾配は用いず、定常磁場勾配のみを印加した。 グラディエントコイルに電流を流すにはバイポーラ電源 BWS18-15 (Takasago Ltd. Kawasaki, Kanagawa, Japan)を3台用いた。グラディエントユニットが作る制御電圧に比例した定電流を流す ことができた。励起用のパルスは、Apollo が作ったバースト波を NMR 用パワーアンプ N146-5559A (THAMWAY Co., Ltd., Fuji, Shizuoka, Japan) で増幅して、LC 共鳴回路をなしている励起コイ ルに入力した。このパワーアンプによって典型的な電圧で数百ボルト、最大出力 300 W の励起パル スをつくることができた。励起側及び受信側のコイルは、いずれも室温部に設置した可変コンデン サと LC 並列共鳴回路を為している。ただし可変コンデンサは共鳴周波数の調整用に 400pF 程度の ものをつけているだけで、静電容量の大部分は冷凍機内部の同軸ケーブルの静電容量が寄与してい る。実験で用いた 4.5 MHz で共鳴するように合わせたとき、共鳴回路の Quality Factor (Q 値) は いずれも約25であった。パワーアンプから出力されるノイズの影響を排除するため、励起側の共鳴 回路とパワーアンプの間には、一般的なクロスダイオードフィルタを挿入した。また受信側のプリ アンプ (超低雑音増幅器 ONS-19705, NF CORPORATION, Yokohama, Japan) は入力インピーダ ンスが 50Ω のものであり、並列共振回路は出力インピーダンスが高いため、キャパシタンスの分圧 回路を用いてインピーダンスを整合させた。プリアンプと Apollo の入力端子の間には、手製の π 型 アッテネータを挿入した。これは信号が大きすぎて Apollo の出力が飽和してしまう場合に信号を小 さくするためのもので、複数のアッテネータをスイッチで切り替えて 0.5 dB 刻みで任意に減衰率を 変化させられるようにしたものである。しかしながら本実験では、低 tip 角の信号はかなり小さく、 アッテネータは基本的に 0 dB の状態にしてあった。常流動相での測定で、90° パルスを撃つ場合の み 10dB 程度信号を小さくした。Apollo に入力された信号は、自動的に PSD 検波されデジタイザー で収録されてパーソナルコンピュータに転送された。

共鳴回路及びプリアンプは、実験室の気温変動、特にエアコンの影響を避けるため、温度調節 箱 [47] に収納した。発泡ポリスチレンの箱に温度測定用の Pt 抵抗とヒーターを設置し、OMRON 製温度調節器 E5CN (OMRON Corporation, Kyoto, Japan)によって温度フィードバックをかけ た。これによって設定温度 40°C の場合、温度変化は ±0.2°C 程度に抑えられた。

5.1.6 Temperature control of nuclear stage

核断熱消磁冷凍機の温度は、温度が磁場に比例するという性質から外部磁場の大きさによって制御 することができる。実験上の精度を上げるため、核ステージの温度を一定に保つように制御すること を目指した。

まず、常に核ステージに流入している熱(約 20nW)によって温度が上昇している。核ステージの モル比熱は

$$C = \frac{\lambda_{\rm n} B^2}{\mu_0 T^2} \tag{5.1}$$

と表される [56, p.185]。ここで $\mu_0 = 4\pi \times 10^{-7} \text{ H} \cdot \text{m}^{-1}$ は真空の透磁率、 $\lambda_n = N_0 I (I + 1) \mu_0 \mu_n^2 g_n^2 / 3k_B$ は 1 mol あたりの核の Curie 定数、 $N_0 = 6.02 \times 10^{23}$ はアボガドロ数、I は核スピンの大きさ、 $\mu_n = 5.05 \times 10^{-27} \text{ J} \cdot \text{T}^{-1}$ は核磁子、 g_n は核の g 因子である。銅の場合は

$$I = 3/2 \tag{5.2}$$

$$g_{\rm n}\mu_{\rm n}/k_{\rm B} = 0.56 \text{ mK/T}$$
 (5.3)

であり、我々の核ステージは有効物質量 $N = 32 \mod をから、その熱容量は$

$$CN = 1.04 \times 10^2 \cdot \frac{B^2}{T^2} \left[\mathbf{J} \cdot \mathbf{K}^{-1} \mathbf{m} \mathbf{K}^2 \mathbf{T}^{-2} \right]$$
(5.4)

である。核ステージへの熱流入の大きさ QNS とすると、その温度は

$$\dot{T} = \frac{Q_{\rm NS}}{CN} \tag{5.5}$$

のレートで自然に上昇する。この時、温度を一定に保つためには自然上昇を丁度打ち消すように磁場 を下げ続ける必要がある。そのレートは

$$\dot{B} = \frac{B}{T}\dot{T} \tag{5.6}$$

$$= \dot{Q}_{\rm NS} \left(1.04 \times 10^2 \ {\rm JK}^{-1} \right)^{-1} \left(\frac{B}{T} \ {\rm mK}^2 {\rm T}^{-2} \right)^{-1}$$
(5.7)

となる。たとえば $\dot{Q}_{\rm NS}=20$ nW、B=2.0 T、T=2.0 mK のとき、 $\dot{B}=0.19~\mu{\rm T/s}=0.69$ mT/h となる。

さらに、この推定熱流入とのズレや、突発的な熱の発生などの影響を打ち消すように、MCT に よって測定した核ステージの温度をフィードバックして磁場を調整した。基本的に外部磁場の大きさ を変化させてから、それに対応した温度に落ち着くにはかなり長い時間がかかる。経験的には磁場の 掃引を終えてから 10 分以上は待たないと熱平衡に達しないようであった。そこで 15 分に一度、常 に測定している MCT の温度の履歴を読み込んで、その最後の 5 分間の温度を平均し、制御したい目 標温度との差の分を合わせるように磁場を掃引した。つまり、先述の一定レートでの down sweep は 常に行いつつ、10 分間待つ →5 分間の平均温度測定 → 標的温度との差を修正、を繰り返す。このよ うにフィードバックをかけることで、かなり良い精度で温度を一定に保つことができた。夜間など実 験装置の周囲に誰もいないときは ±0.5 μ K 以下、誰かいる場合でも ±3 μ K 以下が実現できた。

5.2 Experiment in normal liquid ³He

ここからは実際に行った実験の内容及び結果について説明する。サンプルセルの中に液体³He を圧力 2.8MPa で充填した。この圧力での超流動転移温度の文献値は 2.41mK である [32, p.467]。 NMR 用の外部磁場は、Larmor 周波数で 4.49 MHz になるようにした。永久電流モードにしている 限り、時間による減衰は全く観測されなかった。ただし実験上何度か永久電流モードを解除したた め、精々数 kHz 程度の磁場の変化が起きた。超流動 ³He の周波数シフトの絶対量は Larmor 周波数 に依存するが、変化が元の磁場の 0.1% 以下なので、毎回の Larmor 周波数との差だけを考えれば無 視できる。

5.2.1 Optimization of gradient magnets

磁場の空間変化のうち、座標の一次で変化する項は我々の線型磁場勾配用のグラディエントコイル を一次のシムコイルとして利用することで排除できる。ただし我々が使用した超伝導マグネットは、 冷却して超伝導になるたびに、線材自体あるいは超伝導シールドにトラップされる磁束が異なるた め、磁場の不均一性が毎回微妙に異なる。そこで実験ごとに毎回、各方向について磁場勾配の大きさ を変化させたときの NMR スペクトルの線幅から、最も均一度の良くなる磁場勾配を設定する必要が ある。ところで、今回のサンプルセルは薄い板状である。板は z 方向には平行となるよう作ってある が、x - y 面内では特定の方向を向くよう設計はしていなかった。この場合、x 方向と y 方向の磁場 勾配は分離するのが困難なため、一旦 x 方向と z 方向で磁場を調整した。印加した磁場勾配の大き さに対して、スペクトルの線幅をプロットすると図 5.9 のようになる。



図 5.9 磁場勾配の調整

このような点を fitting した直線の交点から求まる最適な磁場勾配を印加することで、一次の空間 勾配を排除できる。一旦 x, z を合わせた状態で x - y 面での MRI 画像を取得したところ、図 5.10 が得られた。



図 5.10 xy 平面への MRI 投影図。上部の colorbar が色と信号強度の対応を示している。この 後示す MRI/MRSI 画像も全て同じ配色である。

この MRI 測定によって、板がマグネットの x 方向から y 方向に向かって 34.4° 傾いていることが 分かった。以後、この板に平行な方向を x 方向、垂直な方向を y 方向と新たに定義し直す。なお、同 様の測定によって z 方向も 0.5° ほど傾いていることがわかったが、ほとんど影響は無いのでそのま ま扱った。

新たなx, y方向について、再び磁場勾配の大きさを変化させて線幅が最小となる条件を探した。この結果、調整する前の線幅は約 100Hz であったものを、20Hz 程度までシャープにすることができた。ところで、断熱消磁の磁場 B_{demag} の影響を除くために超伝導シールドを用いたが、実は磁場の不均一性には僅かながら B_{demag} の影響が残っていた(図 5.11)。



図 5.11 断熱消磁用の磁場による NMR への影響。赤い。はスペクトルの線幅(縦軸は左)、青い \triangle は中心周波数(縦軸は右)の B_{demag} に対する依存性である。

中心周波数の変化は高々 2 Hz 程度であったが、線幅(プロットしているのは半値全幅である)が B_{demag} の大きいときより小さい磁場では 1.5 倍以上狭くなった。基本的に実験は B_{demag} が 2 T 以下の領域で行ったので、 B_{demag} の影響は大きくないと考えられる。これらの全ての補正を施した 最終的な常流動状態でのスペクトルは図 5.12 のようなものであった。



図 5.12 常流動相での均一磁場下スペクトル。断熱消磁用の磁場が 0.75T で測定したものである。

このスペクトルは 1816 回の FID を積算して S/N 比を稼いだものである。今後示す均一磁場での
スペクトルは、ほとんどの場合 1000 回程度の積算を行ったものである。

また均一磁場 H₀の大きさに関して、マグネットに流す電流を変化させた場合、磁場の強さに若干 のヒステリシスが見られた。つまり、静磁場用のメインマグネットに流した電流の大きさと、³He の NMR 周波数が必ずしも1対1に対応していなかった(周波数シフトの無い常流動相であっても)。 特に、強い磁場勾配を印加する(グラディエントマグネットに1A 程度の電流を流す)前と後では 共鳴周波数が異なっていた。これは、超伝導素材のシールドや線材そのものにトラップされた磁力線 が、安定な配位に向かって移動するためであると考えられる。弱い磁場から上げてきて止めた(永久 電流モードにした)場合は、強い磁場勾配を印加したあとで周波数が下がり、逆に下げてきた後では 磁場勾配によって周波数が上がった。また、何度も様々な方向の磁場勾配をかけ続けると周波数の変 化幅が小さくなっていき、やがては変化しなくなるという効果を示した。このため、磁場を変化させ た後は十分な回数磁場勾配を印加して、周波数の変化を飽和させてから実験に用いた。この操作を磁 場のトレーニングと呼ぶ。磁場のトレーニングが必要で、その結果安定する磁場の大きさがわからな いため、kHz 単位での共鳴周波数の微調整が困難であった。

NMR 信号を検波する Apollo には、特定の周波数にノイズが常に乗っていた。その周波数は動か ないものの、10 から 30 kHz ごとに点在していた。本来であればこのノイズからなるべく離れた周波 数に NMR の周波数を合わせて実験を行うべきであった。しかしながら、先述のトレーニングは十分 安定するまで行うと 1 日以上の時間がかかるため、たまたま都合の良い周波数に落ち着くまで繰り返 すのは実験時間の都合から現実的でなかった。そのため、実際の実験では NMR 信号に比較的近い (3 kHz 程度) 周波数にこのノイズがある状態で用いていた。

5.2.2 Excitation pulse

励起パルスの大きさを変えながら実際の tip 角を測定した。その際、磁場勾配を x 方向に印加して おき空間分解することで、中央付近の励起コイルの作る磁場 H_1 が最大になる位置での tip 角を調べ た(図 5.13)。以下、励起パルスの大きさは H_1 が最大になる位置での tip 角で呼び表す。



図 5.13 励起パルスの大きさを変えたときのスペクトルの変化。x方向に 1 kHz/mm の磁場勾 配を印加した。

この測定された 90°の tip 角に対応するパルスの電圧及び時間幅を決定した。

NMR の熱緩和の時定数 T_1 も測定した。常流動液体 ³He の緩和はバルクではかなり遅いことが 知られているが、今回のように狭い空間に閉じ込めた場合、容器の表面に吸着した固体 ³He との相 互作用により、幾分速くなる [32, p.202,p.399]。我々の測定ではスラブの内部で、約 10mK のとき $T_1 \sim 9$ s であった。低温になるほど T_1 は短くなり、超流動になるとさらに急激に短くなるため、特 に tip 角の小さいパルスしか用いない超流動相では、1 秒程度の間隔で連続してパルスを撃ち込んで も十分緩和しきっていた。

また、僅かながらパルスによる heating が観測された。超流動相で周波数シフトの大きさを温度計 代わりにして、連続でパルスを撃ったときの温度変化を調べた。



図 5.14 パルスによる温度上昇の時間変化

図 5.14 は heating がかなり大きいパルスを撃ったときの温度上昇の時間変化である。T=2.14 mK において、時間幅 3 µs で tip 角 26°のパルスを撃った後、interval を空けて温度測定のパルスを撃っ て観測された FID の周波数から温度に変換したものである。各シーケンスは十分な時間(5 分)をお いて測定した。つまり、図 5.14 はパルスによって生じた熱がどのような時間スケールで液体 ³He に 伝わり、また冷めていくを表している。図を見て分かる通り、パルスを入力してから約 1 秒で温度が 上がりきり、10 秒ほどかけて冷えていく。コイル自体の温度上昇が容器の壁を通って熱伝導で伝わ ると考えると速すぎるため、熱伝導とは考えにくい。また、パルスの tip 角を同じにして時間幅を長 くすると、発熱量は小さくなったので、NMR そのもので共鳴吸収した磁気エネルギーとも考えられ ない。後述するようにサンプルセル内部の容器表面には、NMR の線幅を広くする効果をもたらす何 らかの付着物が存在したため、その付着物で eddy current heating などによって発生した熱が原因 であると考えられる。

励起パルスの時間を長く、電圧を小さくすれば、同じ tip 角で発熱を小さくできた。しかし磁場勾 配をかけて線幅を広くする関係上それも限界があり、実験では典型的に 10 µs で 10° のパルスを用 いた。このパルスでは約4秒以下の間隔でパルスを撃つと、heating の影響が無視できない程度で あったため、高速測定する際のボトルネックになっていた。特に imaging の測定を行う場合、十分な S/N 比を得るため NMR 信号を積算する回数に制限を与えていた。すなわち、セル内部の付着物を 取り除くことができれば更に精度の良い測定が可能になるはずである。

5.2.3 MRI measurement

図 5.15,5.16 に常流動状態で測定した MRI 画像を示す。



図 5.15 *x*-*z* 平面へ投影した MRI 画像。常 流動相で撮影した。中央右上に見える明るい円 状の模様は測定時のノイズである。空間サイズ は図中に示したスケールの通りである。



図 5.16 *x* - *y* 平面へ投影した MRI 画像。常 流動相で撮影した。*y* 方向は狭いので 4 倍に拡 大している(測定時に 4 倍の磁場勾配を印加 した)。

5.15 が x - z 平面への投影図、5.16 が x - y 平面への投影図である。これらの投影図では、残り の方向での信号の分布は全て平均されている。図を見ると、スラブ型のサンプルセルの形状をよく再 現できていることがわかる。x - z 投影図 5.15 の中央右上にはっきりと円状の模様が見えているが、 これは測定時のノイズが作るパターンである。NMR の特定の周波数に常にノイズがある場合、MRI 画像にこのような円状の模様を作る。ちなみに、この円の中心が本当の磁場センターにあたる。この ノイズ円はこの後も出現するが、全て無視する。また、x - z 投影図にはところどころに黒い点が見 えている。これらは、常に同じ位置に出現し、それは超流動 A 相でも変わらなかった。さらに一旦 室温まで戻したあともう一度冷却して実験した際にも全く同じ位置に現れた。このことから、³He の 性質に起因するものではなく、恐らくは容器の壁に製作過程で付着してしまった何らかの磁性体によ る影響で、その周囲の ³He の NMR の線幅が拡がってしまったものであると考えられる。この特徴 についてはあとの MRSI 測定のときにも述べる。

ところで、磁場勾配を *z* 方向及びその真逆の –*z* 方向に印加して得られたスペクトルを図 5.17 に 示す。



図 5.17 常流動状態で *z* 方向に磁場勾配を印加した上で取得したスペクトル。赤の実線は正の方向、青の破線は負の方向にそれぞれ磁場勾配をかけている。

常流動状態では、MRI(あるいは磁場勾配下のスペクトル)は物質の単純な空間分布を示すことが 期待されるので、z 方向に磁場勾配を印加した場合、単純な矩形のスペクトルが得られることを予想 していた。しかしながら、図 5.17 に明らかなように、その低周波側の角に鋭いピークがある。磁場 勾配の方向を反転させても同じく低周波側にピークがあることから、これは明らかに³He の原子の 分布に起因しているものではない。サンプルセルの片方の端に亀裂などのポケットが存在して、その 中に液体が溜まっているのであれば、磁場勾配を反転させるとピークは周波数的に逆の側に移るはず だからである。これは一見非線形な効果のように見えるが、実はそうでなくても説明できる。後の図 5.18 に示した MRSI 測定を見ると、この z 方向の壁際では周囲の周波数よりも高い周波数に信号が 存在しているようになっている。実際、この壁際では周囲よりも少し高い周波数で共鳴していると考 えると、Gzを印加した場合に低周波側の角の近くにピークが立つことは簡単に理解できる。一方、 高周波側になった方では若干のギャップが開くはずだと思うかもしれないが、図 5.18(E),(F),(G) か らわかるように局所的な線幅自体も拡大していると、ギャップが開くのではなく、端がなだらかな斜 面のようになるべきである。図 5.17 を見ると、低周波側の端は鋭く立ち上がっているのに対し、高 周波側では傾きが小さくなっていることがわかる。つまり、この現象は(磁場勾配に対して)線型な 応答をしており、z方向の端では周波数が若干高く、かつ線幅が拡大しているということがわかる。 なお、この現象は、超流動 A 相でも全く同様に発生しており、z 方向の端には周波数の高い線が見え ている。

では、何故そのように NMR 応答が変わっているかというと、それは明らかではない。しかし液体 ³He は、常流動状態でも磁場勾配下でスピン拡散によるスピン波モードが立つことが知られており ([32, p.190], [57])、今回のピークもその一種である可能性が高い。

5.2.4 MRSI measurement

常流動相で MRSI 測定を行った。核断熱消磁冷凍機の予冷中に測定したため、温度は測定中に 27mK から 13.8mK まで変化していた。励起パルスの tip 角は 10° のものを用いた。測定条件はパ ルスのインターバルは 4 秒、一つの *G* に対して FID を 18 発積算した。測定する *G* は全部で 1537 種類であるため、一連の測定にかかる時間は約 31 時間であった。なおこの測定時間は超流動相でも 変わらない。常流動状態での MRSI 測定で得られた、x - z 面内での局所的な周波数分布を図 5.18 に示す。







(C) $-90 Hz \le f < -30 Hz$

 $-210\mathrm{Hz} \le f < -150\mathrm{Hz}$



-150Hz $\leq f < -90$ Hz

(D) $-30Hz \le f < 30Hz$



(E) (F) (G) 30Hz $\leq f < 90$ Hz 90Hz $\leq f < 150$ Hz 150Hz $\leq f < 210$ Hz 図 5.18 MRSI 測定による周波数帯域ごとの信号強度

MRSI 測定で得られたデータは、空間 2 次元 + 周波数 1 次元の強度分布であるため、図 5.18 では 60 Hz 毎に帯域を区切って、局所的にそれぞれの帯域内の信号を周波数で積分した空間分布を示し た。Larmor 周波数を f = 0 Hz としている。ただし各帯域毎に信号の絶対値はかなり異なるため、 最も強い点の強度で規格化した色で表している。スペクトル(図 5.12)を見てわかるように、信号は ほとんどの領域で f = 0 Hz のごく近くに集中している。しかし f = 0 Hz の画像には、MRI 測定 のときと同じ位置に黒い点が存在している。黒い点の位置での、異なる周波数の強度を見るとその点 では線幅が拡がっていることが明らかである。線幅は対称に拡がっているというよりは、低周波側に テールを引いているように見える。これは前述のように表面に付着した何らかの磁性体による影響で あると考えている。

また、30Hz $\leq f < 90$ Hz では板の紙面左下と右上に信号が強く現れている。反対に-90Hz $\leq f < -30$ Hz には、わかりにくいが左上と右下に中央より強い信号が見える。これらは、マグネットの残留磁場勾配を表している。つまり磁場の空間勾配のうち、一次の項をキャンセルするように調整した あと、残る項のうち最も低次の二次の項が支配的になる。この二次の項がいわゆる鞍型の磁場分布を 作っているのである。 G_z を印加したとき低周波側の端に立っていたスピン波のピークは、y方向の 端付近で若干周波数が高く、かつ線幅が拡がる効果として観測されている。

なおこの測定を行った時は断熱消磁用の磁場が 7.3 T と、かなり大きい状態であったため、磁場勾 配を印加していない状態でのスペクトルは図 5.19 に示す通り、低磁場の場合より広くなっていた。



図 5.19 MRSI 測定における均一磁場下スペクトル。青い実線は MRSI 測定における磁場勾配を 掛けていないスペクトルを抜き出したもの。赤い丸と破線で示したのが MRSI の解析後、全局所 スペクトルを平均したもので、解析前の生スペクトルと良く一致している。緑の × と細い実線で 示したスペクトルは図 5.12 と同じもので、断熱消磁用の磁場が弱いときのものである。

7.3 T の時は、0.75 T の場合に比べて、半値全幅で 39.1 Hz /11.6 Hz = 3.37 倍広い線幅を持って いる。ただし、これは単に外部磁場の不均一性が増しているだけである。

5.3 Experiment in superfluid ³He-A

常流動相から核断熱消磁によって冷却し、超流動状態にした。A 相において期待される基底状態の texture は、平板に平行に磁場を印加しているため、 $\hat{l} \geq \hat{d}$ が共に壁に垂直(お互いに平行)で均一と なったものである。これはバルクの基底状態と同様であり、NMR 周波数は均一に $R_T^2 = 1$ となると 予想される。なお壁の法線方向を \hat{y} とすれば $(\hat{d}, \hat{l}) = (+\hat{y}, +\hat{y}), (-\hat{y}, +\hat{y}), (+\hat{y}, -\hat{y}), (-\hat{y}, -\hat{y})$ の 4 つの状態が縮退していることになる。ところで、slab の上下、つまり天井と床に相当する部分の周 囲では、厚さの 100 μ m 分の壁が存在するため、上記の texture とは異なる。しかしその影響は精々 100 μ m 分程度しか及ばない。そのため全体を積分して観測している限りは小さいとして無視して いる。

 $T_{\rm c}$ 前後での周波数シフトの様子を図 5.20, 5.21 に示す。 $T_{\rm c} = 2.41 {\rm mK}$ で超流動転移し、周波数シフトを起こした。図 5.20 はピークの頂点の周波数を示している。



図 5.20 周波数シフトの様子。 $T_c = 2.41 \text{ mK}$ 以上では Larmor 周波数で共鳴しているが、 T_c を下回るとシフトが始まり、以下単調に変化 する。



図 5.21 超流動転移前後のスペクトルの変化。 *T*_c 以下では正のシフトを示す。さらに僅かに線 幅が拡がっていく様子がわかる。この線幅の拡 がりは冷却ごとに、後述する soliton の本数に よって異なっていた。

一方、図 5.21 を見ると、温度が下がり周波数シフトが大きくなるにつれて、僅かに線幅が拡がり ピークが鈍っていることがわかる。この線幅の拡大の程度は冷却の度に僅かずつ異なった。幾つかの 冷却でのスペクトルの差異を図 5.22 に示す。全て 2.00 mK で測定した。



図 5.22 Variation of spectra in A-phase. 右と左のパネルは同じグラフの別スケールである。 ただし右は見かけの S/N 比を稼ぐため $R_{\rm T}^2$ で 0.01 の範囲の移動平均をとっている。

図 5.22 の凡例の番号 (A23、等) はそれぞれ実験で何番目にできた状態であるかを表しており、数 字そのものに物理的意味は無いが、区別をする上で便利なので、この番号で状態を表すことにする。 図 5.22 の各状態のうち、単純な冷却で作ったものは A40 だけで、あとは後述する annealing を行っ てできたものであった。また、これらの状態で撮影した MRI 画像 (*x* – *z* 投影) を図 5.23 に示す。



図 5.23 A 相での MRI 画像の *x-z* 投影図。壁に付着した磁性体による黒い点及びノイズの円は 全て同じ場所に現れている一方、板を横切る暗い線は毎回異なる位置 · 数で現れる。



(B) A51図 5.24 A 相での MRI 画像の x-y 投影図。

ほとんどの冷却ではこれらのような黒い筋が見える状態となっていた。一部の冷却ではこのような はっきりした細い線状では無いものの、やはり周囲より暗く見える領域が存在しており、全く綺麗 で常流動の場合と同じように見えることは一度も無かった。図 5.22,5.23 を見比べると、A30 や A35 のような筋の少ない状態ではスペクトルも比較的シャープでピークの強度が大きい。逆に筋が多く 見えている A40 や A63 ではスペクトルのピークが低くなる。また intensity はかなり小さいが、 $R_{\rm T}^2$ がゼロの辺りまで信号が残っていることがわかる。さらに A35、A51 及び A70 の状態で撮影した、 x - y 面に投影した MRI 画像を図 5.24 に示す。なお綺麗な筋が見えている場合の x - y 投影図はこ の 3 回しか撮影していない。図 5.24 を図 5.23(C),(E),(I) と比較すると、同じ x の位置に筋が存在 することから、これらの筋は何らかの面欠陥 (y - z 面に存在) であることが明らかである。しかし ながら、A35 の場合の磁場勾配のないときのスペクトルを常流動状態と比べると (図 5.25、下側の図 は Intensity のゼロ付近を拡大したものである)、サテライト信号と見なせるピークは全く存在しな かった。



図 5.25 A 相と常流動でのスペクトルの比較。青い破線は常流動状態のスペクトル、赤い実線が A 相 (A35) でのスペクトルである。下のパネルは足元を拡大した同じデータのグラフである。 A35 は比較的少ない筋が見えている状態であり、スペクトルのピークは常流動の場合とほとんど 変わらず、サテライトに相当する信号は一切観測されなかった。

この事実は、MRI 画像に現れた面欠陥が NMR 測定でこれまでに観測されている composite soliton [8,9,11–14,58] とは異なる面欠陥であることを示している。そもそも従来の単純な NMR 測定では、サテライト信号を伴う位相欠陥でなければ原理的に観測できないため、今回観測したタイプ の面欠陥は存在しても発見できなかったのであろう。ところで、MRI 画像に現れる面欠陥は、MRI 測定時の生のスペクトルでは図 5.26 のように鋭い dip として観測された。



図 5.26 A35 と常流動での G_x 下でのスペクトル。赤い破線が A35、青い実線が常流動である。 超流動の方は周波数シフト分ずらして重なるようにプロットしている。 $\gamma G_x = 1.0 \text{ kHz/mm}$ と なる磁場勾配を印加しているので、1 kH が 1 mm に対応する。図 5.23 (c) の黒い線はこのスペ クトルに見える深い dip を示している。

この図 5.26 の最も深い中心の dip の幅は、両側のピーク間の周波数差にして 0.21 kHz であり、このとき印加した磁場勾配の大きさ 1.0 kHz/mm と比較すれば 0.21mm に対応する。

5.3.1 MRSI measurement

A35の状態に対して x-z 面の 2+1 次元 MRSI 測定を行った結果を図 5.27 に示す。



(D) MRI 画像

(E) $R_{\rm T}^2 = 1.0 \pm 0.05$





(G) $R_{\rm T}^2 = 1.1 \pm 0.05$ (H) $R_{\rm T}^2 = 1.2 \pm 0.05$ (I) $R_{\rm T}^2 = 1.3 \pm 0.05$

図 5.27 A35 MRSI 測定による周波数帯域ごとの信号強度。(A,B,C,E,F,G,H,I) は各帯域での 強度分布であり、場所ごとに各帯域内の周波数成分を全て積算したものである。各帯域の幅は図 5.18 のものと同じである。(E) の中に示したカラーバーは局所スペクトル図 5.28 の色に対応し た *x* 座標を示している。(F) は MRSI 測定の全周波数帯域を場所ごとに積算したものである。こ れでは面欠陥のラインや付着物由来のスポットが消えている。(D) は同じ縮尺での MRI 画像 (図 5.23(C) と同じである)。MRI 像と同じ位置に構造があることがわかる。

図 5.27 (D) 中央の面欠陥と同じ位置で (E) $(0.95 \le R_T^2 < 1.05)$ でもやはり強度が下がっている黒 い筋が存在する。前後の周波数には、筋と同じ位置で周囲より強い信号があるため、これは線幅が広 がっていることをしめしている。これは、全体に点在する黒い点でも同じである。また、(F) は全周 波数帯域を積算した画像であるが、こちらではそれらの構造は見られないため、MRI で暗く見えて いる部分でも、実際に ³He の量が少ない、磁化率が小さい等ではなく、同じ強度の信号を出してい るものの線幅が拡がっている結果であることが明白である。なお MRSI によるイメージでは、周波 数の分解能を持たせていることによって、空間分解能自体はシンプルな MRI に比べて悪くなってお

り、画像はぼやけて見える(図 5.27(D) 及び (E) を比較)。この線幅の拡大をわかりやすくするため、 *y*,*z* 方向に積分した局所スペクトルを図 5.28 に示す。



図 5.28 A35 局所スペクトルの x 方向への変化。x 座標ごとにずらしてプロットしており、各ス ペクトルの色はその x 座標を表している。色は図 5.27(E) のカラーバーと対応していて、同じ色 の x 座標での信号を示している。y, z 方向については積分されている。

各スペクトルの色が図 5.27 (D) の中に付したカラーバーの色と対応して、*x* 座標を表す。図 5.27 (D) で筋に見えている部分、すなわち水色から緑色に対応する領域で局所スペクトルの線幅が広がっている様子が明瞭にわかる。この局所スペクトルの線幅を半値全幅で読んだ結果を図 5.29 に示す。



図 5.29 局所スペクトルの半値全幅。

線幅は最も広いところで、周囲の約2倍である 33 Hz まで拡大しており、かつ $R_T^2 = 0.8$ を下回 る周波数までテールを引いている。これは図 5.22 で見られる、 $R_T^2 = 0$ 付近まで続く長いテールの 起源であろうと考えられる。さらに、独立な冷却によって作られた A30(図 5.23 (B))の状態での MRSI 結果(図 5.30)でも、全く同様な局所スペクトルの振る舞いが見られた。



(A) $R_{\rm T}^2 = 0.7 \pm 0.05$





(C) $R_{\rm T}^2 = 0.9 \pm 0.05$



(D) MRI 画像 図 5.23 と同じ画像。



(E) $R_{\rm T}^2 = 1.0 \pm 0.05$



(F) $-1 \mathrm{kHz} < f - f_{\mathrm{L}} < 1 \mathrm{kHz}$ 全帯域



 $R_{\rm T}^2 = 1.1 \pm 0.05$

 $R_{\rm T}^2 = 1.2 \pm 0.05$

(I)

 $R_{\rm T}^2 = 1.3 \pm 0.05$

図 5.30 A35 MRSI 測定による周波数帯域ごとの信号強度。(A,B,C,E,G,H,I) は各帯域での強 度分布である。(F)は全周波数帯域の分布。(D)は同じ縮尺での MRI 画像 (図 5.23(B)と同じで ある)。

これらの実験結果から、観測した面欠陥はサテライト信号を生じない、つまり NMR 周波数シフト の大きな変化は伴わないが、局所的に線幅を拡大させることがわかった。実際、図 5.26 のような磁 場勾配下でのスペクトルに現れる鋭い dip は、その位置で線幅が拡がっていると考えるとよく理解 できる。基本的に、サテライト信号が生ずるためには、欠陥の付近で NMR 共鳴に影響する dipole potential が周囲と異なっている必要がある。例えば composite soliton はその核となる部分で \hat{l} と \hat{d} の dipole-lock が外れているため、bulk とはかなり異なる potential を持つ。そのため周波数の大 きく異なるスピン波を生ずる(6章参照)。逆に言えば dipole-lock の外れていない構造を持つ位相 欠陥の場合、それが存在してもサテライト信号は生じないと考えられる。そこで、この MRI/MRSI

測定で発見した面欠陥を、dipole-lock をほぼ保った面欠陥という意味で、"Dipole-Locked Soliton" (DLS) と呼ぶことにする。その詳しい構造などについては後述する。

5.3.2 Annealing effect

常流動状態から単純に冷却して T_c を通過させたときの texture は図 5.31 に示すようなものであった。



図 5.31 単純な冷却でできた texture の例。

これらの MRI 像は全て 2.00mK ($T/T_c = 0.830$) で撮影したものである。(A)-(F) のように数個 の DLS が生じる場合が多かった。中には (C) や (D) のように z 方向から傾いたり、曲がりくねって いるものもあった。いずれの場合でも NMR 測定でサテライト信号は観測されなかった。また、完全 に綺麗で常流動状態と同じように見える状態は一度も得られなかった。

図 5.31 (A)-(F) のような DLS が存在する texture を、一度 T_c の近くまで温度を上げ、数時間程度 温度を保ってから再び冷却して MRI を行うと、texture が変化している場合があった。A32 と A40 の状態(図 5.31 (E),(F))をそれぞれ $T/T_c = 0.977$ で 15 時間と 26 時間保った後の texture の変化 を図 5.32,5.33 に示す。



図 5.32 A32 から A33 への texture 変化

図 5.33 A40 から A41 への texture 変化

いずれの場合でも DLS の数が減り、その方向も z 軸に平行に近くなったことがわかる。このよう な、 T_c 付近で保持することによって texture を変化させる操作を、"annealing"と呼ぶことにする。 特に図 5.33 での annealing 中は磁場勾配を x 方向に印加してスペクトルを断続的に取得していた。 その時間変化を図 5.34 に示す。



図 5.34 A40→A41 annealing 中の G_x 下スペクトルの時間変化。左側のパネルはスペクトルの時間変化を示している。時間経過は上から下への順である。右側のパネルはそのときの温度変化を表しており、グラフの色が各スペクトルの色と一致している。この横軸が経過時間である。 $\alpha - -\zeta$ の記号は、スペクトルにおける dip と図 5.33 における DLS の対応を示している。

始めの 2 時間ほどは約 2.05 mK から 2.35 mK へと温度掃引しており、温度の上昇に伴う周波数シ フト量の減少から、スペクトル全体が左(低周波側)へと平行移動していることがわかる。図 5.33 に 示したギリシャ文字 α - ζ を付した各 DLS に対応する dip も、追随して左側へ移動していく。なお、 シフト量が小さくなるにつれ欠陥が引き起こす局所的な線幅の拡大も相対的に小さくなるため、dip が浅くなっていることがわかる。しかしそれでも dip が存在した場所で明らかに不規則な構造が確認 できる。ところが図 5.34 に示した時刻で 2 時間の付近において、 $\delta \ge \epsilon$ に対応する dip が対消滅す る様子が観測された。これ以降の 3 時間程はスペクトルに目立った変化は見られず、再び 2.0 mK ま で冷却して MRI 測定を行ったところ、図 5.33 の下に示した画像が得られ、実際に $\delta \ge \epsilon$ の DLS が 消滅していた。このような自発的な texture の変動は、2.0 mK のような十分 T_c から離れた低温で は全く観測されず、温度を T_c に近づけた時にのみ起こった。

さらに、この annealing 中には NMR 周波数の突発的な変化も観測された。図 5.35 は、図 5.32 に 示した A32 と A33 の間に行った annelaing 過程での、NMR 周波数の変化及びそのときの核ステー ジの温度である。



図 5.35 A32→A33 の Annealing 中の NMR 周波数シフトの変化。赤い白抜きの丸。は周波数 の変化(左側の軸)を表しており、青い丸・は温度を示している。初めの 150 分程度までは、低い 温度から掃引してきて、温度コントロールによって一定に落ち着くまでの変動を示している。そ の後、960 分の辺りで温度を再び下げ始めている。

周波数シフトはスペクトルの中心周波数の、Larmor 周波数からのズレを意味する。この解析にお いては、それほど良い近似でないことは承知の上で、スペクトルをガウス関数で fitting し、その中 心周波数を用いている。またこの測定では1分間隔でパルスを撃って FID を測定していた。冷凍機 の温度を変化させ終わり、温度コントロールが正常に作動し始めた 150 分程度の時刻から、960 分付 近で再び温度を下げ始めるまでの間は、温度計上で1μΚ以下の範囲内にコントロールできている。 また、周波数分解能の限界は ±0.5Hz 程度である。そのような測定誤差とは考えにくい長時間での周 波数の変動(1-2 Hz 程度)があるが、これは本質的には実験室の気温の変化に起因すると考えられ る。温度計である MCT は、キャパシタンスブリッジによって静電容量を測定されている。1 μK の 温度差というのは、生の測定値である静電容量に換算すると、10⁻⁵ pF 程度の変化であり、20 pF 程 度の測定値の7桁目となる。キャパシタンスブリッジには、内部に温度 feedback された恒温槽が組 み込んであり、その中に測定の基準となるキャパシタが入っているが、僅かな温度変化が生じて、こ の基準キャパシタの7桁目が変動すると、測定値も同じだけ変動してしまうことになる。この程度の 変化は無理からぬことであると考えられる。つまりは、測定上は温度が一定に保たれているものの、 その測定値自体が室温によって僅かながら変わってしまい、結果として冷凍機の真の温度も1-2 μK 程度変化してしまっている可能性が高い。しかしながら、明らかにそのような変動の範囲を越えた、 短時間の周波数の変動が、スパイクとして図 5.35 に現れていることがわかる。このスパイクに対応 するスペクトルの例を図 5.36 に示す。図 5.35 における t = 522 min の点及び、その前後の点のスペ クトルである。



図 5.36 スパイク及びその前後の時刻でのスペクトルの変化。スパイクに対応する t = 522 のの スペクトルは、その前後と比較して約 4 Hz 低周波側に平行移動している。その形状はほとんど同 じである。

t = 521,523 min の両スペクトルは、ほぼ重なっているのに対して、t = 522 min のものは、形状 は保ったまま、4 Hz ほど平行移動していることが明らかである。スパイクは解析段階での誤差など ではなく、実際にシフトしているのである。

このようなスパイクは、十分低い温度(たとえば 2.0mK)では全く観測されなかった。一方 anneal 中の T_c 近傍では、 T_c に近づくほど大きなスパイクが観測された。温度依存性を見やすくするため、 周波数の平均からのズレをヒストグラムにしたものを図 5.37 に示す。



図 5.37 NMR 周波数における不安定性の温度依存。短時間の変化を平均した中心の周波数 からのズレを示している。それぞれ、(a) $T/T_c = 0.830(2.00 \text{ mK})$ 、(b) $T/T_c = 0.973$ 、(c) $T/T_c = 0.977$ 、(d) $T/T_c = 0.985$ で anneal したときの結果。各パネルの上のヒストグラムは周 波数の出現確率を示している。下側には、少数しか現れなかった点が見やすいように出現数その ものを、かなり拡大して示した。

図 5.37(c) は、図 5.35 の anneal 過程での周波数変化を整理したものである。

大きなスパイクだけでなく、平均付近でのバラつきも T_c に近づくほど大きくなり、あまり明確に それらを分けることはできない。このような温度依存性、あるいは annealing 効果との関係性につい てはあまりよくわかっていない [59]。

このような T_c 付近での texture の自発的な変換は Parts *et al.* (1995) によって報告された例がある [60]。回転する ³He-A に生じる量子渦は、その回転速度や磁場の強さなどによって熱平衡で安定 な渦の種類が異なっていることが知られている [18,61]。ただし、 T_c を通過して冷却するときには安

定な渦状態が生成するものの、冷却してから外部条件を変えてもその条件で安定な渦には変化しない。しかしながら、その熱平衡でない渦のtexture を T_c に近い温度(0.92 T_c 程度)まで上げると異なるtexture に変化したというものであった。この報告で興味深いのは、最も安定なはずの状態にまで緩和したのではなかったという点である。すなわち、二価の量子渦 CUV が鎖状に繋がった vortex sheet (VS)と呼ばれる構造を作っておく。VS は高磁場、高回転で安定である。その texture を回転を遅くして singular vortex (SV)と呼ばれる hard-core singurality を伴う渦が安定な高磁場低回転領域で T_c 近くに上げるとそれらの中間の回転速度で安定な、孤立した CUV の状態に変化したのである。これはどういうことかと言えば、VS とは構造の対称性がかなり異なり、しかも singurality があるため gap エネルギーのオーダーの一時的な励起が必要な SV 状態への転移は起きず、鎖状に繋がっている単位構造を分離するだけで変換できる CUV 状態への転移で留まったということである。

我々が観測した annealing 効果はこれと本質的に同様の現象のはずである。もしもサンプルセルの 形状が理想的な平行平板となっており、かつ表面が完全に平滑で何らのトラップサイトも存在しない ならば、面欠陥は全くエネルギーロス無しに自由にスライドできることになる。しかしながら、十分 低温では全く動かない。特に図 5.31 (C) A10 や (D) A12 のような著しく曲がりくねった構造でさ え準安定に固定されていることから、非常に強いピン留め効果が存在していることが明らかである。 このような強力なピン留め効果自体が実験で確かめられたこともほとんど無い。これは超流動転移 時の自発的なドメイン構造の形成に関連した、Kibble-Zurek メカニズム [62,63]の検証に役立つ可 能性がある。超流動³He は、宇宙誕生直後での欠陥(cosmic strings)生成のメカニズムを実験室で 擬似的に再現し得る系として期待されており、実際幾つかの実験が行われている。例えば、Bäuerle et al. (1996) および Ruutu et al. (1996) による中性子の吸収後にできる渦タングルの研究 [26,27] や、Bradley et al. (2008) による A-B 相境界面の対消滅後に生成するやはり渦タングルの研究 [64] などがある。我々の実験状況では、単純に異なる冷却速度で転移点T。を通過した場合に生じる欠陥 の数を比較するという実験が可能であると考えられる。ただし我々が冷却速度 0.2 μK/min から 10 μK/minの範囲で変化させた結果としては、有意な欠陥密度の変化は見られなかった。なお、生成さ れる欠陥の典型的な空間サイズは冷却速度 au_Q のべき型 $au_Q^{-\nu}$ に比例すると考えられ、平均場近似で の $\nu = 1/2$ を用いると、 τ_Q が50倍変わると欠陥密度は7倍程度変わることになる。とはいえ、統 計的なデータが得られるほどの測定を行っていないので、確たることは言えない。また、特にゆっく り冷却した場合 annealing 効果自体によって生成された欠陥が消滅してしまっている可能性は高いと 考えられる。

5.3.3 Change of texture by large excitation pulses

Gould *et al.* による実験 [14] では、サテライト信号の無い状態の A 相に、磁化を大きく倒す NMR 励起パルスを撃ち込むことで元と周波数シフトが大きく異なる信号(すなわち位相欠陥)を生成す ることができた (2.3.1 節)。この方法で最終的に作られる欠陥は、(bulk では)Maki の Composite soliton [10–13,40] となると理解されている。我々も全く同様に、tip 角にして 180° 程度の巨大な励 起パルスによって、サテライト信号を伴う状態を作ることを試みた。MRI 像に DLS は存在している もののサテライト信号が無い状態(A41)に、温度を 2.0mK に保ったまま、コイル感度が最大にな る中央部分での tip 角が丁度 180° になるパルスを一度だけ撃ち込んだ。巨大パルスを撃ち込む前後 のスペクトル及び MRI 画像の変化を図 5.38,5.39 に示す。なお、撃ち込んだ後の状態を A42 と名付 けている。





A41



図 5.38 大パルスを撃ち込むことによる NMR スペクト ルの変化。赤色で(一部)破線になっているのがパルスを 撃つ前の A41 の状態。青色の実線が撃った後の A42 の状 態である。

図 5.39 大パルスを撃つ前後の MRI 画像。上の図の状態に大パ ルスを撃つことで下の図の状態に 変化した。

図 5.38 を見て分かる通り、明瞭なサテライト信号が出現している。この低周波側に出現したサテ ライト信号の周波数は、ピークの頂点で $R_{\rm T}^2 = 0.67$ であった。これは後述する数値計算から、 \hat{d} ベク トルが逆向きになる composite soliton が生成されたと考えるとうまく結果を説明できる。また、図 5.39 を見ると、MRI 画像が大きく変化している。元々帯状に見える slab の中に、縦に走る 4,5 本の 筋が見えていたが、パルス後は帯が明瞭に見えなくなってしまっている。また中心付近の左側部分に 5 本程度の筋がかなり近接して入っているように見える。さらに中心付近の右側は少し強度が下がっ てしまっているようだが、筋のような構造は観察できない。とはいえ、全体的にぼやけてしまってい るため、どういう状態になっているか明白でない。これは磁場勾配の無い場合での周波数が一様でな い(図 5.38 のスペクトルが大きく拡がっている)ためで、MRI 画像では解釈は困難である。 そこで、この A42 の状態で MRSI 測定を行った。その結果を図 5.40 に示す。



(A) $R_{\rm T}^2 = 0.5 \pm 0.05$

(B) $R_{\rm T}^2 = 0.6 \pm 0.05$



(C) $R_{\rm T}^2 = 0.7 \pm 0.05$



(D) $R_{\rm T}^2 = 0.8 \pm 0.05$

(E) $R_{\rm T}^2 = 0.9 \pm 0.05$



 $R_{\rm T}^2 = 1.0 \pm 0.05$



(G)(H) (I) $R_{\rm T}^2 = 1.1 \pm 0.05 \qquad \qquad R_{\rm T}^2 = 1.2 \pm 0.05 \qquad \qquad R_{\rm T}^2 = 1.3 \pm 0.05$

図 5.40 A42 の MRSI 測定による周波数帯域ごとの信号強度。図 5.30 と同様だが、MRI 画像は 示していない。

信号の見えている部分を横におおよそ4等分して、左から領域1,2,3,4と名付けよう (図 5.41の右 側パネル参照)。



図 5.41 A42 における周波数シフトの空間変化。左側のパネル (a) は局所スペクトルの *x* 座標に 対する変化である。右のパネル (b) は図 5.40(F) に、局所スペクトルの色に対応するカラーバー を付したものである。この下にある矢印と数字が各領域を示している。

領域 2(中央付近の左半分)はほとんど $R_{\rm T}^2 = 1.0$ 前後からシフトしておらず、サテライトの無い 図 5.30 と同様な線幅の広がった線状の領域が 4 本程度見えている。領域 3(同じく右半分)はそう いった線状の構造等は無いが、全体で比較的均一に若干低周波にシフトしており、また線幅もかなり 拡がっている。領域 1,4(中央付近の正方形に近い領域の左と右)では、 $R_{\rm T}^2 = 0.7$ 前後までシフトし た領域が広がっている。

図 5.40 からは、周波数分布が位置によって大きく変化している様子が明らかで、MRSI 測定の強 力さを物語っている。この場合では巨大パルスによって多数の composite soliton が生成され、その 空間密度によって異なる周波数の領域を生み出していると考えられる。領域1 および 4 には、パル スによって生成された composite soliton が多数存在しているであろうが、一本々々を分離して観測 することはできていない。NMR 測定で観測され得る超流動 ³He の局在スピン波モードは、ポテン シャルの深さにもよるが、空間的に ξ_D の数倍程度には拡がって存在する (6 節参照)。そのため、そ れより十分位相欠陥同士が離れている場合でないと、そもそも NMR 信号自体が分離されないこと になる。つまり領域 1,4 では、100 μ m 程度以下の間隔で composite soliton が並んでいると考えられ る。あるいは、壁に平行な (*x-z* 面の) composite soliton が 1 枚ないし少数存在している場合でも 同様の結果になる。領域 2 は、元々の MRI (図 5.39) でも観測されていた DLS が数個程度存在す る。元の状態ではこの領域に 1 個しかなかったため、外の領域にあったものが、composite soliton に押されて移動してきたと考えられる。MRSI 画像から DLS 間の距離を測ると、0.2-0.3 mm であ り、この程度離れると NMR 的に分離されるのは妥当である。領域 3 は解釈が難しい。図 5.41 を見 ると、領域 3 では $R_{\rm T}^2 = 0.9$ 程度で、線幅は欠陥が無い部分の 3,4 倍と相当に広がっている。シフト 量から、composite soliton のような dipole-unlocked な欠陥とは考えられないため、DLS が *x-z* 面 方向に(つまり壁面に平行に)できているか、もしくは DLS の lattice 構造になっているかのどちら かであろうと考えられる。ただし、NMR パルスによって \hat{l} が反転するカイラルドメイン構造が生成 されると考えるのは難しいことと、lattice 構造を作る程の DLS がそもそも存在していなかったこと から、DLS-lattice の可能性は低い。すなわち *x-z* 面の DLS であった可能性が高いが、このとき *x-y* 方向の MRI/MRSI 測定は行えなかった。

6 Simulation

6.1 Simulation of texture

実験結果と texture を対応させるため、安定/準安定に存在しうる texture を数値計算で推定した。 以下、本研究で行った数値計算の手法について説明する。この数値計算は福井大工学研究科の高木丈 夫教授の協力の下、本田 (2015) [65]、岡本 (2016) [48] らが行った計算の手法をさらに改良したもの である。

まず空間をある長さで分割し、計算機上の格子点でその空間を代表させる。この格子点上の標本点 において、A-phase のオーダーパラメータを特徴づける単位ベクトル \hat{d} , \hat{l} , \hat{m} , \hat{n} を設定する。これら のベクトルの角度から、各種の自由エネルギーのロスを計算し、最もエネルギーの低い安定状態を探 索する。今回の方法では物理的な要請から来る境界条件を設定しておき、それから初期条件として 任意のベクトル配置を与え、そこからの時間発展のようにエネルギーが下がる方向へ各ベクトルを 回転させていき、安定な状態へ収束させるという方法を採用した。この方法では境界条件あるいは 初期配置のトポロジーによって決まる準安定な texture でエネルギー極小となり、計算が止まるとい うことが当然あり得る。しかし、むしろこの方が現実の系との対応がよく取れている。本当の意味 での基底状態が必ず現れるとすると、実際に観測されている励起状態としての位相欠陥などを再現 出来ないからである。また空間を離散化しているため、当然ながら離散間隔より十分ゆっくり変化 する構造でないとうまく計算できない。さらに A-phase のオーダーパラメータの対称性を仮定して いるので、A-phase でなくなるような hard-core な singularity を含む構造は、本当の意味で正しく 計算することはできない。ただし、実際のところは無視して扱っても良い場合が多い。というのは、 singularity はコヒーレンス長 $\xi \sim 30$ nm 程度の大きさであり、それより十分大きい soft-core の構造 には、singularity の有無以上の影響は及ぼさないからである。

ところで、今回計算に使用したのは一般的なパーソナルコンピュータであった。そのため完全にフ リーな三次元空間での texture を、十分な空間分解能で計算するほどのマシンパワーが無かった。そ こである方向への並進対称性を仮定した二次元空間での simulation に限定したが、今回の研究には それで十分である。

6.1.1 Numerical parameters

計算の上では、長さの単位として 10 μ m を用いた。圧力 · 温度で変化する諸パラメータは、実験と 一致するように 2.8MPa、2.0mK の値を用いた。 $\rho_{sll} = 1$ と規格化した単位系で、

$$\begin{split} \rho_{\rm s\parallel} &= 1.0 \\ \rho_{\rm s\perp} &= 2.1 \\ C &= 0.58 \\ C_0 &= 1.08 \\ K_{\rm s} &= 0.39 \\ K_{\rm t} &= 0.45 \\ K_{\rm b} &= 1.41 \\ K_5 &= 0.79 \\ K_6 &= 1.35 \end{split}$$

を用いた。

6.1.2 Setting of simulation space

平行平板を図 6.1 のように x - y 面で切った二次元空間で計算を行った。つまり z 方向への並進対称性を仮定した。



図 6.1 数値計算の空間設定。左パネルの青い直方体のような slab 状試料を、黄色い平面で切った断面の 2 次元空間を計算する。すなわち右パネルのように、両側の壁(青い領域)に挟まれた 100 µm 幅の空間(赤色)が液体 ³He である。z 方向へは並進対称性を設定している。

考慮する各種エネルギーのうち、dipole エネルギー (2.24) はその点での \hat{a} , \hat{l} の相対角のみによっ て定まる。磁場によるのエネルギー (2.28) は、外部から与える磁場の強さによってその絶対値が変 わる。しかし我々が実験を行う場合は共鳴周波数が MHz 以上の磁場(30 mT 以上、ほとんどの場合 では約 140 mT)を印加しており、これは dipole 相互作用の強さ(約 3 mT に相当)より遥かに強 いため、強磁場極限に相当する。そのため実質的には \hat{a} を磁場 H に垂直に固定する拘束条件として 働くことになる。磁場は z 方向に印加するため、 \hat{a} は x - y 面内に限定される。凝縮エネルギーは \hat{l} を壁に垂直に固定する境界条件として扱う。計算上は逆に壁の位置をこの境界条件で指定する。すな わち、壁に接していることにする位置では、 \hat{l} が初期条件から動かないように設定する。最後に最も 重要なのが gradient エネルギーである。gradient エネルギーの表式を再掲しておくと

$$\begin{split} f_{\text{grad}}^{\text{ABM}} &= \frac{1}{2} \rho_{\text{s}\perp} (\hat{\boldsymbol{l}} \times \boldsymbol{v}_{\text{s}})^2 + \frac{1}{2} \rho_{\text{s}\parallel} (\hat{\boldsymbol{l}} \cdot \boldsymbol{v}_{\text{s}})^2 \\ &+ \frac{\hbar}{2m} \left[C_{\perp} \boldsymbol{v}_{\text{s}} \cdot (\nabla \times \hat{\boldsymbol{l}}) - (C_{\perp} - C_{\parallel}) (\boldsymbol{v}_{\text{s}} \cdot \hat{\boldsymbol{l}}) \hat{\boldsymbol{l}} \cdot (\nabla \times \hat{\boldsymbol{l}}) \right] \\ &+ \frac{1}{2} \left(\frac{\hbar}{2m} \right)^2 \left\{ \begin{array}{c} K_{\text{s}} (\nabla \cdot \hat{\boldsymbol{l}})^2 + K_{\text{t}} [\hat{\boldsymbol{l}} \cdot (\nabla \times \hat{\boldsymbol{l}})]^2 + K_{\text{b}} [\hat{\boldsymbol{l}} \times (\nabla \times \hat{\boldsymbol{l}})]^2 \\ &+ \rho_{\text{sp}\perp} \sum_{\alpha} (\hat{\boldsymbol{l}} \times \nabla \hat{\boldsymbol{d}}_{\alpha})^2 + \rho_{\text{sp}\parallel} \sum_{\alpha} [(\hat{\boldsymbol{l}} \cdot \nabla) \hat{\boldsymbol{d}}_{\alpha}]^2 \end{array} \right\} \end{split}$$
(2.29)

である。この各空間微分を格子点上の隣接4点との差分に置き換えて計算した。

ところで、計算する領域の一番端での取扱と関連して、差分計算の方法が単純ではないので説明し ておく。最近接点との差分計算をする場合、前進差分、後進差分、及び中心差分が考えられる。つま りある変数 f の k 番めの点での微分 $\partial f / \partial x$ を差分にするとき

$$\frac{\partial f}{\partial x} \to \begin{cases} \frac{f_{k+1}-f_k}{\Delta x} & \text{forward} \\ \frac{f_{k+1}-f_{k-1}}{\Delta x} & \text{center} \\ \frac{f_k-f_{k-1}}{\Delta x} & \text{backward} \end{cases}$$
(6.1)

と表せる。これらのうち、前進または後進差分を用いると、時間発展を計算する場合に空間的な方向の対称性が崩れる恐れがあった。一方中心差分を採用すると、注目している点での値が直接出てこないため、時間発展の計算で gradient エネルギーが寄与しなくなってしまう。そこで、今回は前進差分で計算したエネルギーの平均を採用して、その点での gradient エネルギーとすることにした。二次元の計算で *x*, *y* 方向の両方に対して前進、後進があるので、合計四種類の平均を用いた。式 2.29 の中で、helical instability [33, p.302] の要因となる二行目の項以

外では空間微分は全て二乗の形で現れるので、前進と後進で打ち消し合うことにはならず、むしろ gradient エネルギーの本来の意味の通りなるべくゆっくり変化する効果をもたらすことになるため、 妥当な扱いであると考えられる。二行目の項では、空間微分の一次の形で現れている。この場合、平 均を取ると結局中心差分になるため、エネルギーの大きさとしては問題ない。但し、計算上自発的に helical instability が現れなくなると考えられる。しかし、今回はそもそも helical instability が出る ほどの流れを伴う計算は行わないので、問題は起きない。

x, y方向の領域の端点では片側に隣の点が無いので、前進 · 後進のうち存在する側だけで計算して いる。なお y方向は 100 μ m の gap の内部全体を計算するので、端の点で容器の壁に対応する \hat{l} の拘 束条件を与えた。つまり y方向の端の点では \hat{l} は初期配置から動かない。

ところでこの simulation では、エネルギーの最も低い texture が自動的に得られるわけではない。 基本的には初期条件でもっている対称性を保ったまま、各種エネルギーの大きさから定まる安定なサ イズ、形状に収束する。それゆえ、実現し得る texure のおおよその形状を予め想定し、それが実現 した場合にどうなるかを検証するものである。よって、考えたい位相欠陥あるいは singularity と、 トポロジカルに同じ対称性を持つ初期条件を与える必要がある。

6.1.3 Prohibition of loss-less inversion of \hat{m} and \hat{n}

式 2.29 においては、 \hat{m}, \hat{n} の空間変化は、超流動速度 v_s を介して計算される。超流動流はオーダーパラメータの位相の変化を伴うため、その空間微分で表される。ここで ³He-A の場合は位相因子が \hat{l} 周りの \hat{m}, \hat{n} の回転に吸収できるので、 v_s は \hat{m}, \hat{n} を用いて

$$v_{\mathrm{s},i} = \frac{\hbar}{2m} \hat{\boldsymbol{m}} \cdot \nabla_i \hat{\boldsymbol{n}} \tag{6.2}$$

と表される [33, p.192]。この表現は、完全に連続な関数の場合は数学的に正しいが、単純に離散化すると重大な問題を引き起こすことがある。簡単に表現すると、

$$\hat{\boldsymbol{m}}_{k} = \begin{pmatrix} 1\\0\\0 \end{pmatrix}, \hat{\boldsymbol{n}}_{k} = \begin{pmatrix} 0\\1\\0 \end{pmatrix} \longrightarrow \hat{\boldsymbol{m}}_{k+1} = \begin{pmatrix} -1\\0\\0 \end{pmatrix}, \hat{\boldsymbol{n}}_{k+1} = \begin{pmatrix} 0\\-1\\0 \end{pmatrix}$$
(6.3)

というようにある点で一気に \hat{m}, \hat{n} が反転する場合 ($\hat{l}, \hat{m}, \hat{n}$ の相対的な角度は決まっているため \hat{m}, \hat{n} は \hat{l} 周りに同時に回転する。また \hat{m}, \hat{n} は直交している)、 $\Delta n = \hat{n}_{k+1} - \hat{n}_k$ が \hat{m}_k, \hat{m}_{k+1} と 直交することになるので、式 6.2 に従うと v_s がゼロとなってしまい、計算上エネルギーロスが生じ なくなる。連続な系であれば極めて大きな Gradient energy の loss が生じる状況でありながら、離 散的な系ではむしろ積極的に選ばれるような形になってしまうということである。これを回避するた め、今回は単純なペナルティ関数を与えることにした。つまり Δn の絶対値が反転に近いくらい大き い場合は、gradient エネルギーよりも桁違いに大きなエネルギーロスを恣意的に与えることで、この ロスレスの反転を禁止した。これによる本来のエネルギーとの差異は、 \hat{m}, \hat{n} の空間変化が離散間隔 に比べて十分ゆっくりな場合には現れない。

6.1.4 Example of simulation

この方法による数値計算の結果について、Helsinki の研究グループによる先行研究での結果と比較 するため、回転下の A 相で安定に生じうる Continue Unlocked Vortex (CUV)の texture を計算し た。CUV は図 6.2 のような \hat{l} ベクトルの構造を持った渦である。

Compact double core concentrates all vorticity

PPPPPPPPDDDDD PPP A PPP 1 VVVE VVVV \frown VVVVV Δ <\/ (1) \square 0000000 D Δ Δ $\langle \langle \langle \langle \langle \langle \rangle \rangle \rangle \rangle$ 4 9 9 A 4 Ø 0 9 999900 VVVVVVAAAA A \odot Ø \Diamond 9 888866 0 A A A'O O \odot <u>A A A A A A A A</u> 100 Ø A 6 6 6 \mathcal{P} 0 > 0 >(D) ' ξD y m X

図 6.2 CUV の構造 [66]。 \hat{l} が + \hat{z} を向く中心の周りで circular 型の変化をしている渦(上の渦) と、中心で $-\hat{z}$ を向き周囲で hyperbolic 型になっている渦(下の渦)が組み合わさっている。こ れによって渦の周りでは \hat{l} が同じ向きで均一になれる。ただし、渦を一回転すると位相が 4 π 回る 二価の量子渦となっている。

中心で*Î*が上を向く渦と下を向く渦の2つがセットになった二価の量子渦となっている。このよう に、特定の対称性を持った texture を再現したい場合、我々の方法では初期条件として同じ対称性を 与える必要がある。そこで図 6.3 のような CUV の対称性をもつ初期状態を与えた。



図 6.3 CUV を計算する際に与えた初期条件。 \hat{d} (左パネル)は均一な texture、 \hat{l} (右パネル)は 図 6.2 と同じ対称性を与えた。但し空間的な大きさは全く考慮していない。

また、渦を安定化させるために回転の効果を与える必要がある。物理的意味として、回転の効果は background の常流動成分が回転していることにより、超流動流と常流動流の差が現れることとして 表される。常流動成分は、設定した回転中心の周りに与えた角速度で回転する剛体回転を与えた。す なわち、回転中心を原点 r = 0として、角速度 $\Omega = \Omega_{\rm rot} \hat{z}$ に対して常流動速度 $v_{\rm n}$ が

$$\boldsymbol{v}_{\mathrm{n}} = \boldsymbol{r} \times \boldsymbol{\Omega} \tag{6.4}$$

となる。この回転の中心を計算する空間の原点、つまり図 6.3 における x = 0、y = 0 に指定し、角 速度を 2.0 rad/s にして時間発展させた場合に収束した texture は図 6.4 のようになった。



図 6.4 時間発展計算の結果収束した CUV の texture。左の \hat{a} はおおよそ均一な中で、渦の左右 で y 方向の成分を持つ領域ができている。右側の \hat{l} は初期条件の対称性を保ったまま、空間的に 少し拡がった。

計算の原理的に texture の topological な構造は変化しないので、当然初期条件と同じ CUV の対称性を持っている。しかし渦の大きさが明らかに初期条件より大きくなっていることがわかる。これはすなわち、超流動 ³He の諸パラメータから決まる安定な渦の大きさに収束したということである。画面上側の渦 ($l_z = +1$ を向いている circular 渦)の中心と下側の渦 ($l_z = -1$ を向いている hyperbolic 渦)の中心の間の距離は、先行研究(図 6.2)では丁度 ξ_D の 3 倍である。我々の計算(図 6.4)では 27 μ m であり、計算している条件では $\xi_D \approx 9$ nm であるから ([33, p.201], [32, p.487])、我々の計算でもやはり丁度 3 ξ_D であって、同じ計算結果となった。このように、既に実験と数値計算がよく対応していることが確かめられている先行研究と結果が一致したことが、我々の数値計算による texture の推定の信頼性を保証する。

6.2 Calculation of spin waves in dipole potential

6.1 節のように数値計算で求めた texture に対して、その texture が作る dipole potential の中 に束縛されるスピン波を計算した。各格子点上のサイトでの \hat{d}, \hat{l} の向きから、transverce dipole potential

$$V_{\rm t} = 1 - \left\{ (\hat{\boldsymbol{l}} \times \hat{\boldsymbol{d}})^2 + l_z^2 + \xi_{\rm D}^2 \left[K_{\rm sp\perp} (\hat{\boldsymbol{l}} \times \nabla \psi)^2 + K_{\rm sp\parallel} (\hat{\boldsymbol{l}} \cdot \nabla \psi)^2 \right] \right\}$$
(6.5)

の空間分布を求める。 ψ は x - y 平面での \hat{d} の方向を表す角度である。この potential の中で、微分 演算子

$$\mathscr{D} = -\xi_{\rm D}^2 \left[K_{\rm sp\perp} \nabla^2 + (K_{\rm sp\parallel} - K_{\rm sp\perp}) (\nabla \cdot \hat{\boldsymbol{l}}) (\hat{\boldsymbol{l}} \cdot \nabla) \right]$$
(6.6)

$$(\mathscr{D} + V_{\mathrm{t}})\psi_{\mathrm{t},k} = R_{\mathrm{T}}^2\psi_{\mathrm{t},k} \tag{6.7}$$

を固有値問題として数値的に解く [33, p.370]。この数値解法では有限要素法を用い、スピンの運動振幅 $\psi_{t,k}(x,y)$ を離散化した点で近似して計算した [67] [48, p.60]。実際に用いた計算プログラムは高木丈夫教授に提供していただいたものである。

kはモードの番号を表しており、簡単な量子力学の一粒子を井戸型 potential に閉じ込めたときの 固有値問題と同じく、固有関数 $\psi_{t,k}$ の節の数に対応していると考えるとわかりやすい。有限要素法 において、固有関数の自由度が離散化されたサイトの数だけあるため、モードの数も同じだけある (連続関数の場合無限まである)。言い換えれば離散間隔より短い周期で(空間的に)変動するモー ドは原理的に現れない。ところで、実際の実験系において励起されるのは低次のモードのみである。 これは $\psi_{t,k}$ の符号が、スピンの振動の位相と見なせることからわかる。つまり、高次のモードでは $\psi_{t,k}$ が正の領域と負の領域でスピンがちょうど逆相で振動していることになって打ち消されるため、 励起・観測されない。各モードに対してノルムが一定になるように

$$\int |\psi_{\mathbf{t},k}(\boldsymbol{r})|^2 \, d\boldsymbol{r} = \text{const.} \tag{6.8}$$

と規格化した固有関数を積分した

$$I = \int \psi_{\mathrm{t},k}(\boldsymbol{r}) d\boldsymbol{r} \tag{6.9}$$

の大きさがキャンセルされずに残る信号の強度となる。節の数が多いものは強度が小さくなるであろうことが明らかである。経験的には精々 *k* = 10 程度のモードまでしか有意な強度を持たない。以下では、最も積分強度が大きなモードの 1/10 以上の強度を持つモードだけを考えることにする。

6.3 Calculation for Composite Soliton

Composite soliton は、バルクでも準安定に存在する構造である。 $\hat{d} = \hat{l}$ のドメインと $\hat{d} = -\hat{l}$ の ドメインとの間に形成されるドメインウォールをなす面欠陥となっている。バルクでは両ドメイン での \hat{d}, \hat{l} が乗る直線は平行でない [33, p.276]。図 2.7 のように相対角度が 180° 変化しつつ、soliton の前後では全体として異なる角度になっている。このこと自体は、soliton が splay 型でも twist 型 でも、あるいはその中間の型でも同じである。板の内部でもギャップの中央付近かつドメインウォー ルのすぐ近くでは同様だが、離れると \hat{l} が壁面に固定されていることによって全体として壁に垂直 な向きに戻る。よって、slab 内での dipole-unlocked soliton は大きく 2 種類に分けられる。つまり、 soliton の両側で \hat{l} が同じ方向を向いていて \hat{d} が反転しているタイプと、その逆である。これらの両 方を計算するが、結果的に中心部で bulk の composite soliton と似た変化をする、 \hat{d} が反転するタイ プを slab 内での composite soliton と呼ぶことにする。これを計算すると図 6.5 のような texture と なる。



図 6.5 slab 内に存在する Composite soliton の計算結果。左が \hat{d} 、右が \hat{l} である。

左側が \hat{d} 、右側が \hat{l} の空間変化を表す。ベクトルの色はドメイン構造がわかりやすいように、各ベ クトルの x ないし y 成分を選んで対応させた (d_y, l_x) 。以下全て同様である。両 texture の右半分は $\hat{d} = \hat{l}$ 、左半分は $\hat{d} = -\hat{l}$ で dipole-lock したドメインであり、中央に $\hat{d} \ge \hat{l}$ の相対角が 180° 回転する ドメインウォールである soliton が存在している。数値計算時の空間の離散化は $\Delta x = \Delta y = 1.7 \mu m$ で行った。図 6.5 では 4 点毎に間引いて表示している。

この soliton は y-z 面に沿って存在しており(実験と対応させている)、 \hat{d} ベクトルは磁場方向と 垂直な x-y 面内に固定されているため、いわゆる splay 型の変化([33, p.197], [13]) をしている。 splay 型の soliton は、強磁性体における Neél 型の磁壁での磁化の回転の仕方と同じ回り方をしてい ると言える。また、壁から離れたギャップの中央付近では、bulk の composite soliton と同様に \hat{d}, \hat{l} が相互に逆方向へ回転している。この方が、dipole-unlocked な領域を狭くできてエネルギー的に有 利だからであるが、そのために \hat{l} は一旦逆方向に回っている。一方壁際では \hat{l} は完全に固定されてし まうため、 \hat{d} のみが変化するようになっており、ここが bulk と異なる部分である。

図 6.5 の計算された texture が作る dipole potential は、図 6.6 のようになる。



図 6.6 Composite soliton の作る dipole potential。gradient term が無い場合、各点での周波 数シフトは縦軸の potential の深さに対応することになる。中心に横たわる composite soliton の 部分で深い ($R_{\rm T}^2 \leq 0$) の potential well ができている。

coposite soliton の中心、 $\hat{d} \perp \hat{l}$ となっている部分で、 $R_{\rm T}^2$ 換算で -0.5の potential well ができていることがわかる。

この計算された potential を基に、その中で立つスピン波の固有関数を計算した。k 番目 ($k \le 10$) のモードについて、その固有値 $R_{\rm T}^2$ と積分強度 I を表 6.1 に示す。

k	$R_{\rm T}^2$	Ι
0	0.5898	0.5716
1	0.6583	0.1809
2	0.9387	0.0578
3	1.0250	0.0001
4	1.0485	1.1303
5	1.1034	0.0000
6	1.1269	0.0002
7	1.2587	0.0000
8	1.3323	0.0000
9	1.3409	0.0017
10	1.3427	0.0007

表 6.1 Composite Soliton (図 6.5) の texture の中で立つスピン波のモードとその周波数シフト $R_{\rm T}^2$ 及び積分強度 I_{\circ} k = 4 のモード (soliton の外側の bulk 部分に対応) が最も強度が大きい。

k > 11のモードはいずれも強度が小さく、現実に励起・観測されることは無いと考えられる。さらに $k \le 10$ でも、意味のある強度を持つモードは数個しかないので、以後はそのような kのみ考
える。具体的には、最大の強度を持つモードの 1/10 以上の強度を持つモードである。今の場合は k = 0, 1, 4 について、スピン波の固有関数 $\psi_{t,k}$ を図 6.7 に示す。





図 6.7 Composite Soliton の周りで立つ スピン波。(a)k = 0は soliton に局在する モード。(b)k = 1も soliton に局在する モードだが、両側の壁付近で逆位相で振動 している。(c)k = 4は soliton の外の uniform 部分に対応するモード。ただし soliton 部分でも振幅はゼロでない。

k = 0,1は中心にある composite soliton の部分に局在したモードであり、k = 4は外側の一様 texture な領域で振動するモードであることがわかる。周波数シフト $R_{\rm T}^2$ も、k = 0,1 では約 0.6 なのに対し、k = 4 ではほぼ 1 であることからもそれは明らかである。言い換えれば、composite soliton 付近の幅約 50-80 µm の領域では $R_{\rm T}^2 \approx 0.6$ の周波数で共鳴し、その外側では $R_{\rm T}^2 \approx 1$ で共鳴 していることになる。ところで、k = 0 のスピン波では両側の壁 ($y = -50\mu$ m と $+50\mu$ m)の付近 の振幅の符号(すなわち振動の位相)が同じなのに対し、k = 1を見ると逆位相である。これはそも そも、図 6.5 をよく見ると \hat{l} が板の中央付近では \hat{d} と強調して振れることで composite 型になって いるが、壁の近傍では拘束されて動けないため、 \hat{d} 単独で回転する d-soliton 型である。d-soliton 型 の方が gradient エネルギーが大きいため、dipole potential も壁際で少し深くなっている(図 6.6)。 それゆえスピン波も壁際の 2 箇所で振幅が大きくなる。そしてこの 2 箇所が同相と逆走で振動する 2 つのモードが存在するのである。これら 2 つのモードの周波数はそれぞれ $R_{\rm T}^2 = 0.59, 0.66$ である (表 6.1)。

この周波数、特に k = 1 の $R_T^2 = 0.66$ は、我々の実験において巨大パルスによってできたサテラ イト信号の周波数 ($R_T^2 = 0.67$) にかなり近い。磁気的な擾乱である励起パルスによって直接影響を 受けるのはスピンに関わる \hat{d} であるため、実験で作ることに成功したサテライト信号は、この \hat{d} 型 の composite soliton であると考えることができる。

6.4 I-Soliton

今度はおよそ均一な \hat{d} -texture の下で、 \hat{l} が反転する構造を計算する。なおこれを l-soliton と呼 ぶことにする。 \hat{l} が逆向きになろうとすると、その拘束条件から壁において必ず singularity が発生 する。現実には coherence length ξ 程度の範囲で \hat{l} が定義されない polar phase になっていると考 えられるが、計算上は \hat{l} の大きさをゼロと定義した点を敢えて設定し、singularity (surface chiral domain wall) とした。すなわちその点の両側では、 \hat{l} の向きが反転している(壁には垂直)。この条 件で計算した texture を図 6.8 に示す。



図 6.8 l-soliton の texture。左側の \hat{d} はほぼ均一となっている。右側の \hat{l} は左右で向きが逆で、 その中間では z 方向を向いて 180° 回転している。

やはり右側で $\hat{l} = \hat{d}$ 、左側で $\hat{l} = -\hat{d}$ である。今度は \hat{d} が完全に均一な中で、 \hat{l} がz方向を向いて 反転する構造になっている。この理由は少し複雑である。式 2.29 の中の $K_{\rm s}, K_{\rm t}, K_{\rm b}$ を含む各項は、 それぞれ splay 型、twist 型、そして bend 型と呼ばれる空間変化の仕方をそれぞれ表している。そ の係数 $K_{\rm s}, K_{\rm t}, K_{\rm b}$ は、大きさが等しくない。弱結合極限ではその比は $K_{\rm s}: K_{\rm t}: K_{\rm b} = 1:1:3$ であ る [33, p.196]。強結合の効果を考えてもこの比はそれほど大きく変わらず、計算で用いたパラメー タでは $K_{\rm s}: K_{\rm t}: K_{\rm b} = 1:1.15:3.62$ である。つまり bend 型の変化は splay,twist 型よりもエネル ギーロスが大きい。そして twist-soliton は完全に twist 型の変化しか含まないのに対して、いわゆる splay-soliton は実は splay 型と bend 型の混合なのである(図 6.9)。



図 6.9 splay-soliton 型の texture における空間変化の種類。図の両端付近ではほとんど splay 型の変化であるが、中央は bend 型の変化となっている。中間領域はそれらの混合状態である。つ まり splay-soliton は splay 型だけでなく bend 型の変化を同程度含んでいる。

それゆえ、twist-soliton の方が gradient エネルギーのロスが少なく、安定である。 \hat{d} が反転する 場合は、 $\hat{d} \perp H$ という条件のため splay 型にならざるを得なかったが、 \hat{l} の場合は z 方向を向けるの で twist の方が安定になるのである。そのとき、 \hat{d} は追随できなくなり、結果完全な \hat{l} のみが変化す る soliton になる。

この twist l-soliton が作る dipole potential は図 6.10 のようになる。



図 6.10 l-soliton の作る dipole potential。composite 型よりも深く、中心部でも $R_{\rm T}^2 = -1$ の 深さがある。また、potential well が空間的に広がっていない。

式 2.29 の中に l_z^2 が直接入っているため、composite soliton の場合よりも potential が深くなって いる。この中で立つスピン波のモード(のうち十分な強度をもつもの)を表 6.2 及び図 6.11 に示す。

k	R_{T}^2	Ι
0	0.4587	0.6132
2	0.9762	0.1965
4	1.0507	1.1012

表 6.2 l-Soliton 図 6.8 の texture の中で立つスピン波のモード。最も強度の大きい k = 4 の、 1/10 以上の強度を持つモードだけを書き出している。







図 6.11 l-Soliton の周りで立つスピン波。 (a),(b) k = 0, 2 は soliton に局在したスピ ン波モードである。ただし (b) は soliton に 沿って節が2個ある。(c) k = 4は soliton の外に広がる uniform 部分の信号に対応す るモードである。

50 100 -50

(b)

4

 $\mathbf{2}$

0

-4

-6

0

x [µm]

k=2

420 -2 -4

50

0 y [μm]

k = 0 は明らかに l-soliton に局在するモードで、 $R_{\rm T}^2 = 0.46$ と composite soliton のときよりも更 に低い周波数を持つ。k=4が周りの均一 texture に対応するモードで、 $R_{\rm T}^2=1.05$ は基底状態の周 波数 1 に近い。k=2 に関しては、振幅の強い部分を見るとわかるがこれも soliton への局在モード であろう。振幅の節が 2 つある higher mode であって、その分エネルギーが高くなり、 $R_{
m T}^2=0.98$ はたまたま1に近い数字になっていると考えられる。これらの周波数は、実験によって得られた結果 (サテライト信号の周波数)と一致していない。また、磁気的なパルス信号によって直接影響を受け るのは \hat{d} のみであり、軌道角運動量である \hat{l} を反転させることはできないと考えるのが自然である。 すなわち実験で観測された面欠陥は、この l-soliton ではない。

6.5 Dipole-Locked Soliton

上記の composite soliton や twist l-soliton のような dipole-lock が外れた領域が核となって形成 される面欠陥では、その中心にどうしても dipole potential の深い部分ができる。そうすると、その 周辺で形成されるスピン波モードは有意に(実験での周波数分解能を上回って)大きな周波数シフト の変化を伴い、サテライト信号を生むことになる。。これは、仮に面欠陥でなく量子渦のような線欠 陥であっても同じことである。言い換えると、実験で観測した周波数シフトの変化がほとんど無い位 相欠陥は、dipole-lock がほとんど外れていない構造でなくてはならない。そのような面欠陥として は本質的には図 6.12 に示す Dipole-Locked Soliton (DLS) しか考えられない。



図 6.12 Dipole-Locked Soliton の texture。 左パネルの \hat{d} と右パネルの \hat{l} はほぼ同じ texture となっており、つまり全域で dipole-lock が保たれている。 \hat{l} は壁のすぐ近くでは直立しており、 l-soliton の場合と同様に x = 0 に singular な chiral domain wall がある。

これは、 $\hat{d} = \hat{l} = \hat{y}$ なる領域と $\hat{d} = \hat{l} = -\hat{y}$ の領域の間に形成され、 \hat{d}, \hat{l} が、お互いに平行な条件 (dipole-locked)を保ったまま、回転する構造である。このような構造はトポロジカルには巻数ゼロ (topological charge N = 0) [33, p.269]であり、バルクでは安定に存在できない。gradient エネル ギーと競合するものが無いため、どこまでも拡がって均一 texture になってしまうからである。しか しながら我々の実験のようなスラブ中では、壁で \hat{l} が固定されているため拡がって消滅はできず、準 安定に存在し得る。その場合、必然的に壁際の \hat{l} が反転する位置では singular な \hat{l} のドメインウォー ル、すなわち表面カイラルドメインウォールができることになる。逆に言えば、表面カイラルドメイ ンウォールが壁にピン留めされ存在することによって、DLS は安定化される。この表面カイラルドメイ ンウォールは hard-core な singularity であり、ギャップが潰れている。とはいえ normal state まで戻っているわけでもなく、恐らく ABM 状態とオーダーパラメータの対称性が似ているものの \hat{l} の定義されない (つまり軌道角運動量は揃っていない) polar 相になっていると考えられるが、それ を確かめる手段は今のところ無い。texture の計算の中では壁上の一点で \hat{l} を定義しない (長さゼロ に設定する)ことでこの singularity を表した。図 6.12 下側の \hat{l} の texture で矢印が描画されていな い部分である。l-soliton のときも全く同じことをしていた (図 6.8)。

DLS の空間変化のスケールは、dipole エネルギーのような競合するエネルギーが無いため、 gradient エネルギーだけで決まり、出来得る限り緩やかに変化しようとする。すなわち容器の大き さをいっぱいに使うことになり、今回実験で用いた slab の厚さが 100 µm であるので、100µm 程度 のスケールで変化すると考えられる。図 6.12 を見ると確かに、壁間の中心では約 100 µm かけてゆ るやかにベクトルが回転している。壁のごく近くでのみ、ξD 程度のスケールで変化する。ところで DLS が存在することによるエネルギーロスの大きさは、空間変化のスケールに反比例すると考えら れる。Composite soliton や l-soliton のような dipole-unlocked な面欠陥によるロスと同程度になる のは、 $\xi_D \sim 10 \ \mu m$ 程度の大きさの場合であり、今回用いた容器内ではおよそ 10 倍ほどの開きがあ る。つまり DLS のエネルギーロスの方が 1/10 程度の大きさしかなくその分安定なため、カイラル ドメインウォールはほぼすべて DLS となるのであると考えられる。

DLS が作る dipole potential を図 6.13 に示す。



図 6.13 DLS が作る dipole potential。壁上に存在する singularity の近傍でのみ小さくなっており、他の広い領域ではほとんど $R_{\rm T}^2 = 1$ 程度である。singularity の点では $\hat{l} = 0$ のため、 $R_{\rm T}^2 = 1$ である。

ほとんどの領域ではバルクと同じ $R_{\rm T}^2 = 1$ に相当する potential である。壁際で \hat{d} だけが $\xi_{\rm D}$ 程度 で変化している部分のみ深くなっている。ただし、singularity が設定されている点では $\hat{l} = 0$ にし ているため、式 6.5 を見て分かる通り potential の深さは $R_{\rm T}^2 = 1$ となる。この中でのスピン波は表 6.3 及び図 6.14 の通りであった。

k	R_{T}^2	Ι
0	0.9381	1.7841
2	1.0091	1.6650
3	1.0200	0.4530

表 6.3 DLS 図 6.12 の texture の中で立つスピン波のモード。



 $\begin{array}{c} \begin{array}{c} 4\\ 2\\ 0\\ \psi_{t,2} -2\\ -4\\ -6\\ -8\\ -200 -100 & 0 & 100 & 200 & -50 & y \\ x & [\mu m] \end{array} \end{array} _{(b)} \begin{array}{c} k=2\\ 4\\ 9\\ -2\\ 0\\ y & [\mu m] \end{array}$

図 6.14 DLS の周りで立つスピン波。(a) k = 0は DLS に局在したモード。(b),(c) は外側の uniform 部分に対応したモードで あるが、DLS 付近でも特徴的な振幅を持っ ている。

3 つのモードとも周波数は 1 に近くてあまり変わらない。k = 0のモードは DLS 付近の局在モードである。このモードでは 2 つの singularity 付近のスピンは同じ位相で振動している(スピン波の振幅が同じ符号である)。それに対して、k = 2,3の 2 つのモードでは逆相の振動になっている。また、この逆相の 2 つは、いずれも soliton の外側に広がる uniform 部分のスピンの振動とも強くカップルしており、手前側 ($x = -50 \ \mu m$)の領域が uniform 部と同相なのが k = 2、その逆で奥側 ($x = +50 \ \mu m$)が uniform 部と同相なのが k = 3 である。このように 2 つの singularity 付近で逆相になるモードは、磁化の振動による誘導起電力としては打ち消し合う。一方 k = 0の局在モードともエネルギー的には極めて近いため物理的にはカップリングしており、パルスにより励起された同相モードから逆相モードへエネルギーが移ることは NMR 信号の緩和を示すと考えられる。それはまさしく実験で見られたような NMR 線幅の局所的な拡大となる。

またいずれのモードを見ても、DLS の影響がスピン波に残る空間的な距離は中心から 100-150 μm 程度はある。つまり NMR 信号には幅 250 μm 程度に渡って DLS の影響が及ぶと考えられる。実験 において DLS による線幅の拡大は図 5.26 で示したように、幅約 0.2 mm に渡っていた。これも実 験結果と一致している。

ところで、図 6.14(a) の k = 0 のモードが +y 方向と -y 方向で対称でない、つまり $y = -50 \mu m$ 付近と $y = +50 \mu m$ 付近で振幅が大きく異なっている。これは同じになるべきであると思うかもし れないが、実際は texture が対称にならないので、スピン波も非対称でおかしくない。というのは、 l-soliton のところでも振れたが、 \hat{l} の gradient energy は空間変化の種類 (splay, bend, twist) によっ て異なる。bend 型の変化は他 2 つに比べてエネルギーロスが 3 倍程度大きくなるのである。図 6.15 に singularity 付近の texture を示す。



図 6.15 singularity 付近の \hat{l} -texture 拡大図。左は $y = -50 \ \mu m$ 側、右は $y = +50 \ \mu m$ 側である。singularity 付近の変化は、右では bend 型、左では splay 型になっていることがわかる。

矢印の欠けている singularity の周りでの \hat{l} の変化を見ると、右側の図では bend 型、左では splay 型となっていることがわかる。そのため、 \hat{l} が空間変化するスケールが変わり、短くても ξ_D でしか 変化しない \hat{d} との相対角が両側で異なる。すなわち、ポテンシャルの深さが変わり、スピン波が非対称となるのである。

6.6 Other dipole-locked structures

DLS のようにほぼ全域が dipole-lock した構造であれば、周波数シフトがバルクとほとんど変わら ないことがわかった。それらは容器内でなければ安定に存在できない。ところで、DLS 以外に実験 結果を説明し得るものはないのであろうか。あまりに複雑な構造は考えても意味がないので(簡単な 構造の組み合わせで作ることができる)、比較的単純なものについて考える。すなわち壁面にトラッ プされた singularity の数が各表面に 1 個以下の場合である。

■ゼロ個の場合 まずどちらの側にもゼロ個の場合、完全に均一 texture の基底状態になるか、ある いは図 6.16 のように両サイドでベクトルが反転した形になるかのいずれかである。



図 6.16 Singularity がゼロ個の場合にできる x-z 方向に沿った Dipole-Locked Soliton。

これも Dipole-Locked Soliton であるが、x-z方向(すなわち slab に平行な面)のものであり、実験で観測された y-z 面方向の欠陥とは明らかに異なる。なお、計算したスピン波のモードは図 6.17 に示すようなものであり、その周波数及び強度を次の表 6.4 に示す。



図 6.17 x-z 方向の DLS に立つスピン波の振幅。左は k = 0 のモード、右は k = 1 のモードで ある。k = 1 のモードは振幅が正の領域と負の領域がほとんど同程度にあり、全体積分するとほ とんどキャンセルしてしまっている (表 6.4)。

k	$R_{\rm T}^2$	Ι
0	0.9497	3.7487
1	0.9559	0.1980

表 6.4 x-z 平面の DLS(図 6.16 の texture の中で立つスピン波のモード。二番目に強度が大き い k = 1 のモードでも k = 0 の 1/10 より小さい。

直感的には、スピン波(最低時のモードでは)は*x*方向に一様であって欲しいが、図 6.17 の右パネ ルに示す通り、全く一様ではない。これは恐らく texture の数値計算で生じたわずかな非対称性がス ピン波の固有関数を計算するときに意外なほど大きく影響した結果と考えている。texture の数値計 算では、特に gradient 項の寄与は緩やかな空間変化の場合極めて小さくなってしまい、完全に収束 するには相当な時間をかけて計算させる必要がある。例えば bulk では存在し得ないはずの DLS を 初期条件として、全く境界条件無しで(すなわち bulk と同じ条件で)計算を始めても、全体が一様に なる前にエネルギーの変化がコンピュータの有効桁数の下限に達して動かなくなってしまう。今の計 算手法ではこの問題を避けるのは困難で、どうしても不均一性が残ってしまう場合があるのである。

いずれにせよ、これは単に x 方向に伸びていく Dipoole-Locked Soliton である。実験結果では明 らかに y-z 面方向に欠陥が存在しているため、このタイプでないことは明らかである。

■1 個の場合 次に singularity が片側の壁に一つだけ存在する場合は図 6.18 に示すような DLS が 存在しうる。



図 6.18 Singularity が片側の壁にのみ存在する場合にできる面欠陥。Sigularity から生えた soliton が slab に平行に伸びていく。この soliton はどこかの先で同じような singularity に出会 うまでは消滅できない。

すなわち、壁にピン止めされた singularity から生じた DLS が壁面に平行な方向へ伸びてゆく。 DLS は壁の欠陥でしか消滅できないため、もう一度壁面に欠陥が現れるまでどこまでも伸びざるを 得ない。このような場合、どこかで消滅するとしても、むしろ *x-z* 面の欠陥に近い。スピン波を計算 した結果を図 6.19 と表 6.5 に示す。





(c)

図 6.19 片方の壁から伸びる DLS(図 6.18)の存在下で生じるスピン波。(a) k = 0 は x < 0 の uniform 部では振幅が小さくなっている一方、x > 0の方向へは小さくならず伸びており、soliton に局在するスピン波と言える。(b) k = 2のモードは singularity の付近でのみ逆相の振動をして いるが、概ね外側の uniform 部及び x-z 面 DLS の両方で同相で振動しているモードである。(c) k = 3 は uniform 部と x-z 面 DLS 上で逆相に振動するモードである。

k	$R_{\rm T}^2$	Ι
0	0.9488	2.7227
2	1.0082	1.0297
3	1.0279	0.1301

表 6.5 片方の壁から伸びる DLS(図 6.18)に生じるスピン波のモード。全て $R_{\rm T}^2 = 1$ にかなり 近い。k = 3は uniform 部と x-z 面 DLS での逆相の信号がキャンセルしてしまい、ほとんど観 測にはかからないと考えられる。

これらからわかることは、DLS に沿って x > 0 の方向へ伸びていくモードはあるものの、 singularity の付近にのみ局在するモードは無いということである。つまりこのタイプであっても、実 験で観測されたような *y-z* 方向の面欠陥に見えるような信号は作ることができない。

■両側の壁に1個ずつの場合 図 6.12 の DLS と同じく両側の壁に一つずつの singularity が存在す る場合、もう一つの可能性が存在する。つまり図 6.20 のように *î* ベクトルが紙面上向きと下向きを 互い違いにしている場合である。



図 6.20 交差している Dipole-Locked Soliton (splay 型)。図 6.12 と同じ Singularity の配置で 安定化され得るが、chiral domain wall としての両側の \hat{l} の向きは逆になっている。singularity の周りでの \hat{l} の変化を見ると、どちらでも splay 型であることがわかる。

この場合は y-z 方向と x-z 方向の面欠陥が同時に存在することになる。この交差型の DLS が作る dipole potential は図 6.21 であり、単純な DLS のときの図 6.13 と良く似ている。



図 6.21 交差する DLS が作る dipole potential。singularity のごく周囲にのみ深い potential well が存在する点は通常の DLS の場合と同じだが、ギャップの中央の辺りでも DLS に由来する 微妙な変動がある。

しかしそれに加えて、ギャップの中央にも微妙ながら potential の変動が見られる。これはこのあたりでも \hat{l}, \hat{d} が空間変化しているため、gradient term により potential が作られるからである。この potential の中で立つスピン波は以下の図 6.22、表 6.6 の通りであった。



図 6.22 交差する DSL (splay 型)の中で立つスピン波。(a) k = 0 は singularity 付近、あるい は y 方向の soliton に局在するモードである。図 6.14(a) と違って、 $+y \ge -y$ について対称な形 をしている。(b) k = 2 は両側外の $\pm x$ 方向に伸びる DLS に対応するモードである。ただし中央 付近では外と逆相で振動している。

k	R_{T}^2	Ι
0	0.9299	2.7229
2	0.9596	1.1509

表 6.6 交差する DLS (splay 型)、 図 6.12 の texture の中で立つスピン波のモード

やはり $R_{\rm T}^2 = 1$ に近いものだけが生じる。スピン波の振幅(図 6.22)を見ると、k = 0が中央の y - z方向面欠陥に局在するモード、k = 2はその外側に広がる x - z方向面欠陥の上に立つモード であることがわかる。つまり、シンプルな DLS の場合と異なり、壁面の 2 つの singularity で逆走 の振動となるモードが現れない。局所的に緩和が速くなる現象は、観測にかからない逆相モードへ エネルギーが移っていくことが原因と考えられるため、逆相モードの現れないこのタイプでは、局 所的な線幅の拡大が起きない可能性がある。逆相モードが現れない理由としては、singularity 付近 の texture が対称なことが考えられる。通常型の DLS のところで述べたように (6.5 章)、壁際の singularity 付近の \hat{l} -texture は splay 型と bend 型があり得る(図 6.15)。通常の DLS の場合、伴う 2 つの singularity の内、必ず片方が splay 型、もう片方が bend 型になる。ところが交差型の場合、 その特性上 2 つの singularity 付近では同じタイプの texture が現れることになる。実際、図 6.20 は どちらも splay 型であることがわかる。つまり 2 つの singularity 付近の texture が全く同じもので あるので、スピン波でも全く同じように振動するのであろう。

ここで、当然ながら bend 型の texture を持つ交差する DLS の存在が考えられる。その数値計算 された texture を図 6.23 に示す。



図 6.23 交差する DLS (bend 型)の texture。図 6.20の splay 型と比べると、中央で \hat{l}, \hat{d} が向いている向きが逆になっているだけである。しかしそれによって、singularity 付近の texture が bend 型に変わっている。

ー見何も変わっていないが、中央で x 方向を向いているベクトルが図 6.20 とは違って左向きに なっていることがわかる。数値計算の初期条件をそうなるように設定しただけではあるが、この違い が splay 型と bend 型の違いを生む。確かに、singularity 付近の texute を見ると、bend 型の変化を していることがわかる。

この時の dipole potential は図 6.24 の通りである。



図 6.24 bend 型の交差 DLS が作る potential。splay 型の場合(図 6.21)とほぼ同じである。

splay 型との違いは見てわかるほどではない。そしてスピン波のモードを図 6.25 及び表 6.7 に 示す。



図 6.25 交差する DSL (bend 型)の中で立つスピン波。(a) k = 0、(b) k = 2 共に図 6.22 の splay 型とほぼ同じであるが、k = 0 のモードは splay 型と比べて singularity 付近での振幅がや や低い。

k	R_{T}^2	Ι
0	0.9412	3.3724
2	0.9582	0.5811

表 6.7 交差する DLS(bend 型)の texture の中で立つスピン波のモード

やはり k = 0,2 の 2 つのモードがあり、いずれも splay 型の場合と非常に良く似ている。しかし k = 0 のモードでは、明らかに振幅が splay 型の同じモードよりも小さい。図 6.26 にこの 2 つのタ イプの texture におけるスピン波固有関数の差分を取ったグラフを示す。



図 6.26 Splay 型と Bend 型のスピン波固有関数の差分。(a) k = 0、(b) k = 2 ともに Splay – Bend を計算した。

splay 型のk = 0モードは、singularity 付近の振幅が bend 型に比べて大きいのに対し、それ以外 の部分では小さくなっていることがわかる。図 6.14 の単純な DLS の場合でも bend 型の singularity 周りの方が、bend 型の部分よりもスピン波振幅が大きかった。これは、bend 型の方が gradient energy が大きく、より狭く深い potential well ができるため、スピン波の振幅が局所的に大きくなる ためであると考えられる。これらの考察からしても、DLS 以外には実験結果を説明できる構造は存 在しない。但し、シンプルな DLS と交差型(splay,bend のいずれにしても)の DLS は NMR の特 性はほとんど変わらないと考えられるため、交差型の可能性も残る。

以上では、全て面欠陥について考えたが、0次元ないし1次元の欠陥の場合、その特性上強磁場下では全域で dipole-lock を保つような構造は実現できない。

7 Discussion

数値計算の結果からは、実験で観測された周波数シフトが基底状態と変わらない面欠陥は、これ までに観測されていたような composite soliton、あるいはそれに類する unlocked なそれではなく、 dipole-lock 型の soliton と考えざるをえない。

7.1 Spin Dynamics in Pulsed-NMR

ここでは、6章において数値計算で求めたスピン波のモードと、実際に実験で観測される信号の 関係について考察する。今回の数値計算によってわかるスピン波は、外部からの振動磁場に対す る定常状態としてのモードである。つまり、cw-NMR の測定に対応している。cw-NMR の場合に は、数値計算による周波数の固有値と固有関数の積分強度が、実験による吸収曲線のピークの位置 と強度比にそのまま対応することになる。しかし pulsed-NMR の場合には、そう単純とは限らな い。励起パルスは短い時間(10 µs 程度)のバースト波であるため、数十 kHz 程度の広い周波数 の成分を含む。ほとんどのモードの周波数は含むことになるので、単純に励起という点では比較的 低次のあらゆるモードが励起されることになる。あとはそれらのモード独立に振動するだけであれ ば cw-NMR と基本的に同じ結果になるが、pulsed-NMR ではモード同士のカップリングと、スピ ンスーパーカレントの影響によるダイナミクスが存在すると考えられる。そもそも、cw-NMR と は異なり pulsed-NMR ではスピンをある程度大きく倒す必要がある。例えば今回の実験では、最 大で tipping angle $\theta = 10^{\circ}$ 程度となる pulse を用いていた。 $\cos(10^{\circ}) = 0.985$ であるから、周波 数シフトの大きさは (1 + 3 cos θ)/4 = 0.989 となってわずか 1% 程度しか変わらないものの、spin dynamics を cw 極限と近似してよいと言われる 4° よりは 2.5 倍程大きいことになる。そのため、 本来ならば Leggett 方程式(2.55,2.62)を線形化せずにそのまま扱う方が良いと考えられる。つま り、完全なスピンダイナミクスを計算しようと思えば Leggett 方程式 2.55,2.62 に緩和およびスピ ンスーパーカレントの項を加えて、励起されてからの時間発展を考える必要がある。緩和の効果と しては、bulk の均一 texture の超流動 ³He では Leggett-Takagi 効果 [68, 69] [33, p.395] が支配的 となる場合が多い。Leggett-Takagi 効果は、超流動³He のスピンを二流体モデルのように Cooper 対を組んでいる部分と準粒子の部分で分けて考えることによって現れる intrinsic なスピン緩和の機 構 [33, pp.394-403,475-479] である。この緩和による共鳴線幅は実効的な緩和時間 τ_R によって

$$\Gamma_{\rm L}^{\rm A} = \Omega_{\rm A}^2 \tau_{\rm R} \tag{7.1}$$

と表される。ただしこれは縦共鳴の線幅であって、横共鳴の線幅としては

$$\Gamma_{\rm T}^{\rm A} = \Gamma_{\rm L}^{\rm A} \frac{\Omega_{\rm A}^2}{\omega_{\rm L}^2 + \Omega_{\rm A}^2} \tag{7.2}$$

となる。 $\tau_{\rm R}$ は理論計算及び過去の研究から図 7.1 のようになっている。



図 7.1 $\tau_{\rm R}$ の値 [33, Figure 10.5]。実線は理論計算で、各点は実験値 (Webb *et al.* (1975, \circ), Eska *et al.* (1982, \blacktriangle))

これは圧力が 20 bar でのものではあるが、ことなる圧力であっても桁が変わることはないため、 $T/T_{\rm c} = 0.83$ での $\tau_{\rm R} \approx 0.3 \times 10^{-6}$ s という値を用いて計算すると、 $\Gamma_{\rm T}^{\rm A}/2\pi = 2.7$ Hz となる。図 5.22 のような A 相でのスペクトルの線幅は約 20 Hz であって、LT 効果による線幅よりもかなり広 いが、これは勿論磁場の不均一性が決定している線幅である。一方、MRSI の局所スペクトルは、そ のような不均一な磁場の影響は排除されており、原理的には物質自体の緩和から定まる線幅を測定す ることが可能なはずである。そこで、Normal と A 相での MRSI 測定から得られた局所スペクトル を図 7.2 で比較する。



図 7.2 常流動相及び超流動 A 相における MRSI による局所スペクトルの比較。欠陥などが存在 しない位置での局所スペクトルを 5 pixel × 5 pixel で平均したものであり、常流動相 (a) 及び A 相 (b) の画像で中央付近の正方形に黒くなっている領域の信号である。(c) に青い △ で示したの が常流動での局所スペクトルであり、赤い。が A 相である。なお、A 相は A35 の状態である。

A 相の周波数はシフト量の分平行移動してある。N 相での半値全幅は 33.5 Hz、A 相では 14.9 Hz となっている。この線幅は期待に反して、同じ条件の磁場勾配の無い状態で測定したスペクトルの線 幅 (N 相で 39.1 Hz、A35 で 16.9 Hz) とほとんど変わらない。そもそも常流動状態での測定で、断 熱消磁の磁場が小さい (0.75 T) 時は磁場勾配無しのスペクトルの線幅が 11.6 Hz であった。また、 この時の温度は 2.5 から 3.0 mK、MRSI を測定した時の温度は約 14 mK から 27 mK であった。常 流動状態での NMR の緩和は、今の実験状況では壁面に van der Waals 力により吸着した固体 ³He の磁化を通して熱浴へ逃げる機構が支配的であると考えられる。固体の磁化は T^{-1} 、スピン拡散係 数が T^{-2} の温度依存性を持つため、低温の方が緩和が速くなる。そのため。MRSI 測定を行った温 度での intrinsic な線幅がより低温での線幅 11.6 Hz よりも広くなることは考えられない。すなわち、 MRSI 測定によって intrinsic な緩和そのものによる線幅を直接定量的に測定することはできていな いことになる。これは何故かと言えば、MRSI 測定時に取得した各 FID を 4 節の通り解析して局所 スペクトルを計算する際に、時間ドメインでのデータは実際に測定した時間分しかないためである。 これは直接には用いたコンピュータのメモリの大きさという装置的な限界のためであるが、そもそも は実験の S/N 比が有限であるということが問題である。つまり、本来は物質の相互作用で決まる緩 和時間 (T₂)の数倍の時間まで、磁場勾配についてコヒーレントに NMR 信号は続いているのである が、実験的には磁場の不均一によって決まる緩和時間 (T₂)の数倍程度で完全にノイズに紛れてしま う。それゆえ本当の局所スペクトルの復元に必要な FID がノイズに紛れた後の信号は、実際には測 定しても意味が無いことになる。このように、局所スペクトルが磁場勾配を明示的に印加していな い場合の線幅よりも狭い線幅をもっている場合には正しい線幅の測定が出来ないことになる。しか し逆に、それよりも線幅が広くなっている部分は十分 FID の信号が残っている領域から作られるた め、本来の線幅を復元できるということになる。図 5.29 に示した DLS の中心付近での局所的な線幅 は約 33 Hz であり、このように全体の平均よりも広がっている部分の線幅は定量的に信頼できると 考えられる。すると、LT 機構から期待される線幅の約 3 Hz よりも 10 倍に広がっていることがわか る。つまり 10 倍程度強い緩和が働いていることになる。この強い緩和は、スピン波の逆位相モード に遷移することに加えて、texture が非一様であるためにスピンスーパーカレントが流れるようなダ イナミックな現象により引き起こされると考えられるが、それらの影響は非常に複雑で難しく、完全 に取り込んだ数値計算に成功したという報告は未だ無い。

とはいえ、Gould *et al.* の実験 [14] においても、tip 角 10° - 20° での pulsed-NMR を行ってい る。それでも十分に理論計算と整合しているように、pulsed-NMR を用いても、ことに相対的な周 波数シフトの測定に関しては十分信頼に足る結果が得られている。実際に我々のシステムにおいて、 pulsed-NMR と cw-NMR で測定したスペクトルを図 7.3 に示す。



図 7.3 A35 texture の状態において pulsed-NMR と cw-NMR で測定したスペクトル。実線は pulsed-NMR によるものであり、それ以外の 3 本の線は cw-NMR を同条件で測定したものである。 f_0 は約 4.5 MHz であり、pulsed-NMR で常流動状態において測定した周波数を用いた。

我々の測定回路その他は pulsed-NMR 用に最適化したものであり、cw-NMR による測定は間に合

わせの装置で行ったので、ベースラインが波打っているなどかなり精度の悪いものであって、サテ ライトの探索など詳細な見方はするべきでない。しかし NMR 信号のメインピークははっきり見え ており、その周波数は比較可能である。図 7.3 は図 5.23 (c) に示した A35 の texture で行った測定 の結果であり、cw-NMR は連続で行った三度の測定の結果をプロットしている。ピークの位置は三 度の測定全てで同じであり、その周波数は pulsed-NMR のものと比較して 15 Hz 程度高くなってい る。全体のシフト量がほぼ 600 Hz であり、その 2.5% 程度ズレていることになる。 $R_{\rm T}^2 = 0.975$ に なる tip 角は約 15° である。但し、これらの測定における周波数の基準は、それぞれ異なる装置から 得ている。装置のスペックからすると、周波数の絶対値に ppm 程度の誤差があり、測定周波数 4.5 MHz から考えると 5 Hz 前後は基準が違っている可能性がある。この差を含めると、図 7.3 における 共鳴周波数の差は、誤差の範囲内で tipping angle によるシフト量の変化であると考えて良い。つま りはスピン波の数値計算とのシフト量の比較は、我々の pulsed-NMR による測定でも問題がない。

NMR の線幅が拡がる理由をスピン波の観点から直感的に考えてみる。我々の数値計算によれば、 DLS 付近で有意な振幅を持つスピン波のモードが複数ある。すなわち、壁際の singularity 付近でス ピンが同相で振動するモード(図 6.14, k = 0)と逆相のモード(同じく k = 3)である。これらはエ ネルギー(周波数)が近く、同じ位置に局在するモードであるため、片方が励起された後もう一方に エネルギーを移す可能性がある。その場合逆相のモードでは、外部に放射される振動磁場は打ち消 されるため、同相のモードより小さくなる(表 6.3, k = 3 の I が小さい理由である)。これはつま り、同相のモードから逆相モードに移る現象は NMR 信号の緩和として観測されるということであ る。これは局所的に線幅が拡がることをよく説明できる。

7.2 NMR signal from solitons

多数回の冷却によって、様々な位置に soliton が存在する状態が作ることができた。これらのデー タを統計的に考えてみることにする。つまり MRI 測定によって soliton の数を数え、それと NMR 信号の変化を調べた。

NMR 測定の感度はスラブ内の位置(x 座標)によって異なるので、その感度分布で各 texture に おける soliton の数を規格化した。つまり MRI 画像中に見られる soliton を、最も信号の強い中心部 にある場合は 1 本、その半分の感度になっている部分にある場合は 0.5 本というように数え、NMR 信号に寄与する本数を定義した。それぞれの texture で得られた磁場勾配をかけない NMR スペクト ルの、ある周波数($R_{\rm T}^2$ で表す)での強度を規格化された数にプロットしたものが図 7.4 である。



図 7.4 NMR スペクトル強度の soliton の個数に対する依存性。(a)-(f) は各周波数における値を 抜き出して、直線で fitting したグラフ。

それぞれの直線はプロットを一次式で fitting したものであり、 $R_{\rm T}^2 = 1$ では傾きが負だが、それ以 外では正になっている。これは soliton が多くなるほど、ピーク ($R_{\rm T}^2 = 1$) が低くなり低周波側に信 号が移っていることを示している。この近似直線の傾き *S* 及び *y* 切片 *I* を、あらゆる周波数で求め、 それぞれプロットしたものが図 7.5,7.6 である。



図 7.5 傾きスペクトル S。soliton 一個あたりの NMR 信号の変化と考えられる。Inset は足元 を拡大した異なる縮尺のグラフ。



図 7.6 切片スペクトル *I*。soliton が無いときの理想的なスペクトルと見なせる。Inset は足元を 拡大した異なる縮尺のグラフ。

傾きのスペクトルは soliton が一個生じることによって変化する NMR 信号分、言い換えると

soliton が作る信号と基底状態の信号の差分であると考えることができる。一方切片スペクトルは、 soliton が一つもない完全にクリーンな texture で観測できるスペクトルに相当する。この傾きのス ペクトルからも、MRI-MRSI 測定と同様、soliton がかなり NMR の線幅を拡げる効果を与えている ことがわかる。ところで、傾きスペクトルに適切な定数 *cs* をかけたものを切片スペクトルに足すと、 DLS が出す信号を復元することができるはずである。この定数は正確に推定する根拠は無いが、適 当な幾つかの数を設定して復元された DLS からのスペクトルを作ったのが図 7.7 である。



図 7.7 DLS が作る NMR スペクトルの推定。各色の線は、凡例に示したように S と I を混ぜた信号である。

S は傾きスペクトル、*I* は切片スペクトルを意味している。明確な論理は無いものの、*c_S* を決定するためにこの復元されたスペクトルの線幅を求めてみる。*c_S* の値に対して半値全幅をプロットしたのが図 7.8 である。



図 7.8 復元されたスペクトル線幅の cs に対する依存性。cs を 0.1 % ずつ変えて半値全幅を求めた。

ところどころ値が小さく jump しているのは、スペクトルの形状が単調でないためである。最も線幅が広くなっているのは $c_S = 9.3$ % のときで 34.8 Hz となっている。これは MRSI 測定から得られた DLS での局所スペクトルの線幅 33 Hz とほぼ一致している。なおその時の DLS スペクトルを図7.9 に示す。



図 7.9 $c_S = 9.3$ % のときの DLS スペクトル。

定数 *cs* は信号全体に占める soliton の信号の大きさであるから、その値から soliton 信号が及ぶ空間の大きさを推定できる。コイルの感度分布を規格化した信号では 100 % はほぼ 3.0mm に対応するので、9.3 % はおよそ 280 µm となる。MRI 画像では暗い線の幅はほぼ 100µm に見えているが、強度が下がって見える部分は、線幅が拡がる効果が及ぶ領域より狭くなるはずである。なぜなら元の



図 7.10 常流動と A35 での G_y 下スペクトルの比較。青い破線が常流動、赤い実線が超流動 A35 でのスペクトルである。磁場勾配は $\gamma G = 4.0$ kHz/mm の強さで印加している。

比較的狭い領域でも線幅ゼロではないからである。それゆえ、MRI 画像から直接その効果の及ぶ距 離を推定することは難しい。MRSI による局所スペクトルの線幅(図 5.29)を見ると、300 μ m 程度 は線幅が拡がっており上記の推定とおおよそ合致している。さらに DLS の数値計算(5.28 節)で得 られたスピン波の及ぶ空間はおよそ 250 μ m 幅であった。またスピン波の強度は、表 6.3 に示してあ るが、DLS に局在するモードである k = 0,3 の強度の和を全体 (k = 0,2,3)の和で割ると 0.573 と なり、計算領域 400 μ m からすると 230 μ m 分に相当する。これらの値はファクター 1.3 倍程度の範 囲で一致している。なお、composite soiton のスピン波計算からその強度を見積もると、幅 80 μ m 分に相当する。これに比べれば有意に大きいことになる。

ここで、交差型の DLS について考える。6.6 節で述べた通り、交差型も周波数シフト R_T^2 はほと んど 1 なので、通常の DLS と変わらない。同じようにスピン波の振幅(表 6.6)から交差型 DLS の 作るモードの信号強度を見積もると 270 μ m に相当し、通常の DLS と有意といえる差は無い。特に 図 5.24 の各 MRI 画像 x - y 投影図を見ると、x - z 方向にも面欠陥が存在するようにも見え、交差 型の方が実験と合致しているように感じられる。しかし、交差型の場合はスピン波の逆相モードが出 ないため、線幅が拡がる効果を同じモデルでは説明できない。また G_y をかけた状態でのスペクトル (図 7.10)を見ると、 G_x をかけたときの鋭い dip とは少し様子が異なっている。板の端に相当する スペクトルのエッジが鈍っており、中心よりむしろ壁の付近で緩和が強く効いていると解釈するとよ く説明できる。別の texture の時ではあるが同じような soliton が見えている状態で、y 方向の 1 次 元で周波数分解した MRSI 測定を行った結果を図 7.12 に示す(A35 では測定していなかった)。



図 7.11 A73 の *x* - *z* 面 MRI 画像



図 7.12 A73 の y 方向 1+1 次元 MRSI 測定結果

この画像から見ても、スラブの中心よりも壁際の方が線幅が拡がっている様子がわかる。すなわち、*x* – *z*方向に同じような面欠陥が存在するわけではない。何よりも、エネルギーが高くより不安定で複雑な交差型が毎回選択的に生じるとは考えにくい。以上から、観測した DLS が交差型である可能性は低いと言える。

7.3 Chiral Domain Structure

ここまででの議論から、観測された面欠陥は Dipole-Locked Soliton であることがわかった。こ の DLS は、Walmsley et al.(2004) [2] が \hat{l} の方向(すなわちカイラリティ)のドメインウォール として可能性を挙げていた程度であった。それというのも、この論文で示したように NMR のサテ ライト信号が現れないので観測が難しいからである。しかしながら DLS は、これまでよく知られ た dipole-unlocked 型のドメインウォールと比べて、エネルギーロスがかなり小さい。システムサ イズによって空間変化のスケールが異なるため一概には比較できないが、エネルギーロスの大きさ に反比例して空間スケールが小さくなるので、今回のような ξ_D の 10 倍程度の空間に存在する場合 は composite soliton の 1/10 程度のエネルギーロスであると言える。これだけエネルギースケール が異なる場合、自然に発生する頻度はかなり差があると予想される。実際我々の実験では 30 回以上



図 7.13 DLS 密度の冷却速度に対する依存性。赤い • が実験によって得られた MRI 画像から数えた soliton の密度を T_c 通過時の冷却速度に対してプロットしたものである。青い破線は Kibble-Zurek 機構による $D_s \propto R_{col}^{1/4}$ の傾きを示す guide for eye である。

行った冷却の全てでサテライト信号は無く、しかし MRI には DLS が観測されていた。ところで池 上らの実験 [3,42] では、18 mm×18 mm と我々よりかなり広い領域を観測していたにも関わらず、 過半数では single domain の texture ができていたことは、我々の結果とは相反するように思える。 しかしながら、池上らの実験は液体³Heの自由表面(気液共存界面)で行われており、そこは完全 に平滑な界面であると考えられる。つまり defect をピン留めするサイトは全く存在せず、 \hat{l} のドメイ ンウォールができたとしても僅かな擾乱で自由に移動できる。そのため彼らのサンプルでは、表面 に例えば DLS が多数できたとしても、多くの場合速やかに観測範囲外へ移動するか消滅したのであ ろう。実際彼らは、例えば地震の振動でドメインウォールが動いたと思われる観測を報告している。 一方我々の観測した状況では、液体 ³He は必ず容器の壁に接している。この壁は作成方法から考え て、最大数 μ m 程度の凹凸は多数存在しているはずである。これは dipole healing legth $\xi_{\rm D} \approx 9 \ \mu$ m と比較しても無視できるほど小さくないし、coherence length $\xi_0 \approx 20$ nm から見ると圧倒的に大き い。すなわち、欠陥がそのように大きい凹凸を乗り越える時には有意に自由エネルギーが変わること になってしまうため、ピン留めのサイトとして働くことになる。しかも図 5.31 に示した soliton が大 きく曲がっているような texture が安定化されているという事実は、これまで考えられてきたよりも かなり強いピン留めが働いていることを示している。またあえて試料の³He に ⁴He を混入させ、容 器表面に⁴He の薄膜を吸着させることで界面での specularity を制御するという実験手法がよく知ら れており、この実験においてもピン留めの強さを制御する方法として利用できる可能性がある。ただ しその場合、表面の持つ凹凸を1 μm 以下にするような努力が必要かもしれない。

7.4 Soliton Density

単純な冷却によって生成した DLS の数を、板の中での密度 D_s として冷却速度 $R_{cool} = dT/dt|_{T=T_c}$ に対してプロットしたものが図 7.13 である。いわゆる Kibble-Zurek 機構では、有限の冷却速度で 2 次相転移して対称性が破れる時、有限サイズのドメインが多数現れることになり最

終的に位相欠陥が残る。その位相欠陥の平均間隔は転移する際のオーダーパラメータの相関長と同程 度となるから、すなわち冷却速度に依存する。我々の実験で観測されたような chiral domain wall の 場合では、平均した一次元の domain size がそのまま欠陥密度の逆数である。T = 0 での coherence length $\xi_0 = 20$ nm と Fermi 速度 $v_{\rm F} = 35$ m/s を用いて、domain size を見積もる。

$$\tau_Q = \left. \frac{T}{dT/dt} \right|_{T=T_c} \tag{7.3}$$

$$\tau_0 = \frac{\xi_0}{v_{\rm F}} \tag{7.4}$$

$$\xi(T) = \frac{\xi_0}{\sqrt{1 - T/T_c}}$$
(7.5)

$$\tau(T) = \frac{\tau_0}{1 - T/T_c}$$
(7.6)

$$c(T) = \frac{\xi(T)}{\tau(T)} = \frac{\xi_0}{\tau_0} \sqrt{1 - T/T_c}$$
(7.7)

$$t_{\rm F} = \sqrt{\tau_0 \tau_Q} \tag{7.8}$$

$$1 - \frac{T_{\rm F}}{T_{\rm c}} = \left(\frac{\tau_0}{\tau_Q}\right)^{1/2} \tag{7.9}$$

$$\xi_c(T_{\rm F}) = \int_0^{t_{\rm F}} c(T)dt \sim \frac{\xi_0 \tau_Q}{\tau_0} \left(1 - T_{\rm F}/T_{\rm c}\right)^{3/2}$$
(7.10)

$$=\xi_0 \left(\frac{\tau_0}{\tau_Q}\right)^{1/4} \tag{7.11}$$

$$D_s = \xi_c (T_{\rm F})^{-1} \propto R_{\rm cool}^{1/4}$$
(7.12)

quench time τ_Q , correlation length $\xi(T)$, relaxation time $\tau(T)$, velocity of casual horizon c(T), freeze out time $t_{\rm F}$ そして domain size $\xi_c(T_{\rm F})$ から [24]、最終的に soliton の密度 D_s が cooling rate $R_{\rm cool}$ の 1/4 乗に比例することがわかる。この指数を表す直線を図 7.13 に guide for eye として示し てある。具体的な数字としては $R_{\rm cool} = 1.0 \,\mu {\rm K/min}$ のとき $\tau_Q = 1.45 \times 10^5$ s, $\tau_0 = 5.71 \times 10^{-9}$ s から domain size $\xi_c(T_{\rm F}) = 191 \,\mu {\rm m}$ となる。すなわち $D_s = 5.24 \,{\rm mm^{-1}}$ である。図 7.13 に引いた 直線は、この数字のちょうど 1/5 にあたる。つまり絶対値としてはこの理論的な推定値より 5 倍小 さいことになる。推定よりも soliton が少ないことに関しては、前述の annealing 効果が影響してい る可能性がある。すなわち、冷却過程において T_c を通過したあともある程度の温度領域では欠陥が 十分動いて、隣接する欠陥と接触するなどした場合に消滅し得ることが、今回の実験においても確か められている。すると当然、低温で安定した場合の密度は、実際に生成した密度よりも小さくなるは ずである。このような理由によって少なくなっている可能性が高い。しかもその減少の程度は偶々生 成した欠陥の状況に応じて毎回異なると考えられるため、必然的にグラフの点の散らばりが大きく なってしまう。

1/4乗の依存性があるかどうかについてはグラフから判断することが難しい。点の散らばりかたに 比べて変化の絶対量が小さいからである。今回の実験精度からでは Kibble-Zurek 機構の検証に耐え るデータは得られなかったということになる。これは依存性が指数 1/4 と非常に弱いことが原因で ある。実験パラメータの冷却速度は、これ以上広い範囲で変化させることは難しい。まず金属であ る冷凍機と、液体へリウムの間には Kapitza resistance と呼ばれる大きな熱抵抗があり、巨大な表 面積を持つ熱交換器を使用することで熱交換を果たしているが、あまり速くすると冷凍機の温度変 化に液体 ³He の温度が追随しなくなってしまう。sintered Ag powder と液体 ³He の間の Kapitza 抵抗の文献値 [56, p.86] は、熱抵抗 $R_{\kappa} = \Delta T/\dot{Q}$ が T = 2.4 mK 付近で $AR_{\kappa} \sim 1 \times 10^5$ m²·K/W

となっている。A は表面積である。今回用いた熱交換器は、表面積が約 10 m²×2 個になるように設 計した。よって $R_{\kappa} = 5 \times 10^3 \text{ K/W}$ となる。また P = 2.8 MPa、 $T = T_{c}$ での比熱がおおよそ 0.1 J·mol⁻¹·K⁻¹ で、相転移に伴う比熱の jump によりその約 2 倍になる [32, p.464]。使用した ³He は 0.39 mol だから熱容量 $C = 7.8 \times 10^{-2}$ J/K である。一定の冷却速度で冷凍機を温度変化させた場 合に、冷凍機と液体 ³He の間でつく温度差は $\Delta T = R_{\kappa} C R_{cool}$ であり、例えば $R_{cool} = 1 \ \mu K / \min$ のとき、 $\Delta T = 6.5 \ \mu \mathrm{K}$ と計算される。この ΔT より十分広い範囲で温度掃引している場合は、液 体も同じ速度で温度変化していると見なせるが、そうでない場合は冷凍機の冷却速度よりも遅い温 度変化になってしまう。すなわち、 $T_{\rm c}$ での冷却速度は、精々 10 $\mu {
m K}/{
m min}$ が限界であって、それよ りも速くしても実際には遅い冷却になってしまうのである。また、遅い温度変化をさせる場合にも 限界がある。この場合最も問題となるのは、核断熱消磁冷凍機に流入する熱 Q_{NS} である。この起源 は大きく分けて、機械的に繋がっていることによる熱伝導、高温部からの輻射、そして振動による eddy current heating があるが、今最も支配的なのは eddy current heating である。これによる発 熱は時間的に一定でないという点が厄介である。なぜなら、冷却は Q_{NS} による温度上昇を打ち消し た上で、さらに温度が下がるようにする必要がある。しかし Q_{NS} が突発的に変化するようでは、そ の変化量の絶対値よりも小さい温度変化を制御することは不可能になってしまうからである。Q_{NS} は典型的には 10-20 nW 程度であった。20 nW の場合温度上昇は、例えば断熱消磁を始めたばかり の条件の良い時でも B = 1.6 T、T = 2.4 mK で $\dot{T} = \dot{Q}/CN = 26$ nK/min である。 $\dot{Q}_{\rm NS}$ が時間変 化がどの程度なのかは測定する手段も無いが、その平均値と同等程度の振幅であると仮定すると、30 nK/min 程度が遅い温度変化の限界であると考えられる。つまり図 7.13 の測定において変化させて いる横軸の範囲がほとんど現実的な限界であり、これ以上拡げることは極めて困難であるということ になる。すると意味のある測定を行うためには、soliton 密度の散らばりを小さくする他ない。現状 およそ factor 2 の範囲で分布しているが、これはおそらくセルが、転移で生成する domain size よ りも大きなスケールであるため、観測している texture は既に多数の domain wall が連結や対消滅 を繰り返して出来上がったものであると考えられる。すると各ドメインがどのように繋がるかはラン ダムになってしまい、分布が大きくなるし密度の絶対値も転移で生成したときよりも小さくなってし まう。かといって例えば直径 100 μm の円筒容器に替えるなどすると、内部で安定化する texture が 別のものになってしまうので、同じように domain wall が観測できるかわからない。我々の実験状 況では、DLS に対するピン留め効果は平行平板を形成している x-z 面の壁よりも、その上下にある *x-y* 面の方が強いようであった。もしも平行平板でのピン留めをもっと強くすることができれば、転 移時に生成した texture をほとんどそのまま保存して冷却できるかもしれない。そうすればはるかに 精度が高くて意味のある測定ができるであろうから、敢えて壁に凹凸を作ると良いかもしれない。

8 Conclusion

我々は長年探索が行われてきた超流動・超伝導体におけるカイラルドメインの形状を世界で初めて 可視化することに成功した。すなわちカイラルドメインウォールの発見である。これは新規に開発 した超低温核磁気共鳴分光映像化法(Ultra-Low-Temperature Magnetic Resonance Spectroscopic Imaging, ult-MRSI)による最初の成果である。

今回発見したカイラルドメインウォールは、Dipole-Locked Soliton (DLS) と名付けたように磁気 双極子エネルギーを最小化した状態(dipole-lock)を保ったままカイラリティが反転する構造であ る。具体的には ³He-A のオーダーパラメータを特徴づける軌道角運動量の方向 \hat{l} と磁気異方軸 \hat{d} が、 お互いに平行なまま回転する構造である。このような構造はトポロジカルな巻き数が基底状態と同じ くゼロであるため、バルクでは存在できない。そのため、理論的にも予想されたことはほとんど無 かったが、容器の内部では意外にもそちらの方が頻繁に存在しうることが実験的に明らかになった。 DLS の空間的なサイズ(幅)はシステムサイズ、つまり容器の大きさと同じオーダーになると考え られる。今回の実験では厚さ 100 μ m のスラブ状なので、dipole healing length $\xi_D \sim 10 \mu$ m より 10 倍程度大きくなっている。位相欠陥のエネルギーは大雑把にはその特徴的な空間スケールに反比 例するので、従来の sipolu-unlocked な composite soliton などと比べて一桁小さいエネルギーしか もたないことがわかる。意外に小さなエネルギーでカイラルドメインウォールが存在できるという事 実は、我々が uniform な texture を一度も観測できなかったことと無関係ではない。

今回の我々の実験結果から考えても、DLS はこれまで世界中で数多行われた³He-A の実験におい て、実際にはかなりの頻度で発生していたと考えられる。しかしながら DLS は磁気的にはほとんど 基底状態と変わらないため、NMR 共鳴周波数のシフトからでは発見することができないものであ り、見逃されていたものと推察される。我々は強力な MRI/MRSI の手法を用いることで、DLS 近 傍での局所的な NMR 線幅の拡大が発生していることを明らかにし、初めてその存在を捉えることが できた。この点もこの研究の画期的な点である。

実験では DLS の近傍で NMR の線幅が 2 倍以上拡大している。しかしその理由の詳細は明らかで ない。スピン波の数値計算からは、NMR の外部振動磁場とカップルするモードから、カップルしに くいモードへとエネルギーが逃げるというモデルが考えられるが、定量的な議論ができていない。こ の緩和が DLS に特有の性質なのかどうかに関してはさらなる理論的な研究が必要である。

この研究成果によって、カイラル超流動・超伝導体の研究がさらに発展することが期待される。例 えば本論文に記述していないが、anneal 操作中にスラブの両側で温度差をつけた場合、DLS が低温 側に移動する現象を観測した。これは流れとカイラルドメインウォールの相互作用によって引き起こ されている可能性があり、カイラリティの方向を特定することに繋がる。カイラルドメインウォール の実空間での位置と、その符号が特定できるとその近傍で生じるはずの edge current の観測が期待 できる。NMR では mass current の向きや大きさを直接測定することは困難だが、磁場下では↑↑ と ↓ のペアの差を利用して弱い spin current として観測できるかもしれない。また、未だ観測されて いないカイラル超流動体での巨視的な軌道角運動量を発見する足がかりにもなる。我々の結果から は、思いの外シングルドメインの構造ができないことがわかった。その理由が明らかになれば、逆に シングルドメインを作って角運動量を測定することに繋がることが期待される。

謝辞

指導教員として長らくお世話になりました、佐々木豊先生には感謝を申し上げます。また松原明先 生にも多くのことを教えていただきました。京大物理第一教室の前野先生、寺嶋先生には多くの助 言を頂き、また相談にも乗っていただきました。(旧)京大低温センターの皆様には、寒剤の供給を 始め大変お世話になりました。横山さんは毎日液体窒素・ヘリウムを配達していただき、その存在な くしては実験ができなかったと言っても過言ではありません。澤田先生には試料の³He をお借りし、 低温実験について多くのことを教えていただきました。石川学博士、木村涼子さんには種々の議論や 息抜きにお付き合いいただきました。結婚・出産おめでとうございます。お皿をいただきありがとう ございました。福井大学工学部の高木先生には texture の数値計算について、ほとんど全ての面でお 世話になりました。大阪市立大学超低温研の畑先生、石川先生、矢野先生、小原先生および学生の皆 様には、³He の精製でお世話になり、また各種の助言をいただきました。University of Florida の Yoonseok Lee 先生には、フロリダ滞在中大変お世話になりました。東大の福山先生にも非常に良く していただきました。その他、超低温分野の関係者の皆様にも、議論や助言その他お世話になりまし た。ご期待に添えなかった点については申し訳ありません。

またこの研究は、研究室 OB の金本真知さんが行われた研究を引き継ぎ、発展させたものです。特 に MRSI の解析システムは金本さんがその基礎を固められました。同じく OB の本田くん、岡本君、 西岡君も今回の研究を共に行いました。Texture の数値計算は、高木先生の指導の下、本田君が基礎 を作成し、岡本君がさらに洗練させたプログラムを元に改良して行いました。さらに岡本君は、金本 さんの MRSI 解析プログラムを実用段階まで大きく発展させました。西岡君は実際の実験とデータ 解析を手伝ってくれました。それ以外にも伊藤さん、人見さん、西山博士、渡邊博士には様々なこと を教えていただきました。久保君、木崎君、宮岡君、Stephane Faure 博士、大田君、福部君、正田 君他、低温研 OB の皆様とは色々議論を交わしたり、共に食事に行ったりと研究生活に不可欠な存在 でした。

家族、特に両親には感謝の言葉もありません。金銭的な援助をはじめ、何しているのかわからない 息子のことを温かく見守って支えてくれました。祖父は食べ物やいろんな物を送ってくれたり持って きてくれたり、とても助かりました。姉とその婚家の目家の皆様にもお世話になりました。甥の藤吾 は無事に育っているようで何よりです。また、友人達にはいつも息抜きにつきあってもらいました。

最後に関係者の皆様に改めて感謝を捧げます。大変お世話になりました。ありがとうございま した。

参考文献

- [1] 国立天文台(編). 理科年表 平成 23 年(机上版). 丸善, 2010.
- [2] P. M. Walmsley, I. J. White, and A. I. Gorov. Intrinsic Pinning of Vorticity by Domain Walls of *l* Texture in Superfluid ³He-A. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. **93**, p. 195301, Nov 2004.
- [3] H. Ikegami, Y. Tsutsumi, and K. Kono. Chiral Symmetry Breaking in Superfluid ³He-A. Science, Vol. 341, No. 6141, pp. 59–62, 2013.
- [4] M. M. Salomaa and G. E. Volovik. Vortices with Ferromagnetic Superfluid Core in ³He-B. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. **51**, pp. 2040–2043, Nov 1983.
- [5] E. V. Thuneberg. Identification of vortices in superrfluid ³B. Phys. Rev. Lett., Vol. 56, pp. 359–362, Jan 1986.
- [6] O. T. Ikkala, G. E. Volovik, P. J. Hakonen, Yu. M. Bun'kov, S. T. Islander, and G. A. Kharodze. NMR in rotating superfluid ³He-B. *JETP lett.*, Vol. 35, pp. 416–420, 1982.
- [7] P. J. Hakonen, M. Krusius, M. M. Salomaa, J. T. Simola, Yu. M. Bunkov, V. P. Mineev, and G. E. Volovik. Magnetic Vortices in Rotating Superfluid ³He-B. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 51, pp. 1362–1365, Oct 1983.
- [8] O. Avenel, M. E. Bernier, E. J. Varoquaux, and C. Vibet. Intrinsic Relaxation of Longitudinal NMR in ³He-A. In M. Krusius and M. Vuorio, editors, *Proceedings of the 14th International Conference on Low Temperature Physics*, Vol. 5, p. 429. Otaniemi, Finland, North Holland, Amsterdam, 1975.
- [9] C. M. Gould and D. M. Lee. Double-Peaked Longitudinal and Transverse NMR Spectra in Superfluid ³He-A. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. **37**, pp. 1223–1226, Nov 1976.
- [10] K. Maki and P. Kumar. Magnetic solitons in superfluid ³He. Phys. Rev. B, Vol. 14, pp. 118–127, Jul 1976.
- [11] K. Maki and P. Kumar. Composite Magnetic Solitons in Superfluid ³He-A. Phys. Rev. Lett., Vol. 38, pp. 557–560, Mar 1977.
- [12] K. Maki and P. Kumar. Composite solitons and magnetic resonances in superfluid ³He-A. *Phys. Rev. B*, Vol. **16**, pp. 182–190, Jul 1977.
- [13] K. Maki and P. Kumar. Composite solitons and magnetic resonance in superfluid ³He-A. II. *Phys. Rev. B*, Vol. **17**, pp. 1088–1094, Feb 1978.
- [14] C. M. Gould, T. J. Bartolac, and H. M. Bozler. Experimental Studies of Solitons in Superfluid ³He-A. J. Low. Temp. Phys., Vol. 39, No. 3, pp. 291–314, May 1980.
- [15] H. K. Seppälä and G. E. Volovik. Evidence for Nonsingular Vorticity in the Helsinki Experiments on Rotating ³He-A. J. Low. Temp. Phys., Vol. 51, No. 2, pp. 279–290, 1982.
- [16] H. K. Seppälä, P. J. Hakonen, M. Krusius, T. Ohmi, M. M. Salomaa, J. T. Simola, and M. G. E. Volovik. Continuous Vortices with Broken Symmetry in Rotating Superfluid ³He-A. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. **52**, pp. 1802–1805, 1984.
- [17] Ü. Parts, J. M. Karimäki, J. H. Koivuniemi, M. Krusius, V. M. H. Ruutu, E. V. Thuneberg, and G. E. Volovik. Phase Diagram of Vortices in Superfluid ³He-A. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 75, pp. 3320–3323, Oct 1995.
- [18] O. V. Lounasmaa and E. Thuneberg. Vortices in Rotating Superfluid ³He-A. Proc. Natl.

Acad. Sci. USA, Vol. 96, pp. 7760-7767, 1999.

- [19] Ü. Parts, E. V. Thuneberg, G. E. Volovik, J. H. Koivuniemi, V. M. H. Ruutu, M. Heinilä, J. M. Karimäki, and M. Krusius. Vortex sheet in rotating superfluid ³-A. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 72, pp. 3839–3842, Jun 1994.
- [20] G. E. Volovik and V. P. Mineev. Line and point singularities in superfluid ³He. JETP lett., Vol. 24, pp. 561–563, 1976.
- [21] V. V. Dmitriev, A. A. Senin, A. A. Soldatov, and A. N. Yudin. Polar Phase of Superfluid ³He in Anisotropic Aerogel. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 115, p. 165304, Oct 2015.
- [22] N. Zhelev, M. Reichl, T. S. Abhilash, E. N. Smith, K. X. Nguyen, E. J. Mueller, and J. M. Parpia. Observation of a new superfluid phase for ³He embedded in nematically ordered aerogel. *Nat. Commun.*, Vol. 7, p. 12975, Nov 2016.
- [23] S. Autti, V. V. Dmitriev, J. T. Mäkinen, A. A. Soldatov, G. E. Volovik, A. N. Yudin, V. V. Zavjalov, and V. B. Eltsov. Observation of Half-Quantum Vortices in Topological Superfluid ³He. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 117, p. 255301, Dec 2016.
- [24] W. H. Zurek. Cosmological Experiments in Superfluid Helium? Nature, Vol. 317, pp. 505–508, 1985.
- [25] T. W. B. Kibble. Phase transitions: Cosmology in the laboratory. Nature, Vol. 317, p. 472, 1985.
- [26] C. Bäuerle, Y. M. Bunkov, S. N. Fisher, H. Godfrin, and G. R. Pickett. Laboratory simulation of cosmic string formation in the early Universe using superfluid ³He. *Nature*, Vol. **382**, pp. 332–334, 1996.
- [27] V. M. H. Ruutu, V. B. Eltsov, A. J. Gill, T. W. B. Kibble, M. Krusius, Y. G. Makhlin, B. Plaçais, G. E. Volovik, and Wen Xu. Vortex formation in neutron-irradiated superfluid ³He as an analogue of cosmological defect formation. *Nature*, Vol. **382**, pp. 334–336, 1996.
- [28] Y. Sasaki, T. Ueno, K. Nishitani, H. Nakai, M. Fujisawa, K. Fukuda, and T. Mizusaki. Development of Magnetic Resonance Imaging Technique for Ultra Low Temperature Physics. *J. Low. Temp. Phys.*, Vol. **113**, No. 5, pp. 921–926, Dec 1998.
- [29] T. Ueno, Y. Kawaguchi, Y. Kinoshita, Y. Sasaki, and T. Mizusaki. Magnetic Domain Structure of U2D2 Solid ³He by Using the Magnetic Resonance Imaging. *J. Low. Temp. Phys.*, Vol. **127**, No. 1, pp. 1–10, Apr 2002.
- [30] Y. Sasaki, E. Hayata, T. Tanaka, H. Ito, , and T. Mizusaki. Construction of ULT-MRI cryostat for ultra low temperature physics. J. Low. Temp. Phys., Vol. 138, No. 3, pp. 911–916, Feb 2005.
- [31] T. Tanaka, M. Yatsuya, T. Mizusaki, and Y. Sasaki. MRI Study of Nucleation and Growth During the Field Induced First Order Phase Transition Between U2D2 and CNAF 3He near Absolute Zero. J. Low. Temp. Phys., Vol. 158, No. 5, pp. 737–748, Mar 2010.
- [32] E. R. Dobbs. Helium Three. OXFORD UNIVERSITY PRESS, New York, 2000.
- [33] D. Vollhardt and P. Wölfle. The Superfluid Phases of Helium 3. Taylor & Francis, London, 1990.
- [34] Y. A. Vdovin. Application of Methods of Quantum Field Theory to Problems of Many Particles, p. 94. Moscow: GOS ATOM ISDAT, 1963. (in Russian).

- [35] R. Balian and N. R. Wertharmer. Superconductivity with Pairs in a Relative p Wave. Phys. Rev., Vol. 131, pp. 1553–1564, Aug 1963.
- [36] P. W. Anderson and P. Morel. Generalized Bardeen-Cooper-Schrieffer States and the Proposed Low-Temperature Phase of Liquid ³He. *Phys. Rev.*, Vol. **123**, pp. 1911–1934, Sep 1961.
- [37] P. W. Anderson and W. F. Brinkman. Anisotropic Superfluidity in ³He: A Possible Interpretation of Its Stability as a Spin-Fluctuation Effect. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. **30**, pp. 1108–1111, May 1973.
- [38] A. J. Leggett. Interpretation of Recent Results on He³ below 3 mK: A New Liquid Phase? *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 29, pp. 1227–1230, Oct 1972.
- [39] A. J. Leggett. The spin dynamics of an anisotropic fermi supefluid (³He?). Annals of Physics, Vol. 85, No. 1, pp. 11–55, 1974.
- [40] G. A. Kharadzë and K. Maki. Large magnetic perturbation and solitons in superfluid ³He-A. *Phys. Rev. B*, Vol. 26, pp. 1182–1185, Aug 1982.
- [41] R.W. Giannetta, E.N. Smith, and D.M. Lee. Evidence for a metastable mode of superfluid ³He-A. *Physics Letters A*, Vol. 62, No. 5, pp. 335–336, 1977.
- [42] H. Ikegami, Y. Tsutsumi, and K. Kono. Observation of Intrinsic Magnus Force and Direct Detection of Chirality in Superfluid ³He-A. J. Phys. Soc. Jpn., Vol. 84, No. 4, p. 044602, 2015.
- [43] R. H. Salmelin and M. M. Salomaa. Internal Magnus effects in superfluid ³He-A. Phys. Rev. Lett., Vol. 63, pp. 868–871, Aug 1989.
- [44] P. M. Walmsley, D. J. Cousins, and A. I. Golov. Critical Velocity of Continuous Vortex Nucleation in a Slab of Superfluid ³He-A. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 91, p. 225301, Nov 2003.
- [45] J. Kopu, R. Hänninen, and E. V. Thuneberg. One-dimensional textures and critical velocity in superfluid ³He-A. *Phys. Rev. B*, Vol. 62, pp. 12374–12380, Nov 2000.
- [46] 巨瀬勝美. NMR イメージング. 共立出版, 2004.
- [47] 笠井純. エアロジェル中液体 ³He に対する局所的測定法の開発. Master's thesis, 京都大学 大学 院理学研究科, 2014.
- [48] 岡本耀平. 平行平板中の超流動 ³He-A 相における Surface Chiral Domain Wall により安定化 されたテクスチャー. Master's thesis, 京都大学 大学院理学研究科, 2016.
- [49] W. H. Press, B. P. Flannery, S. A. Teukolsky, and W. T. Vetterling. Numerical Receptes in C [日本語版] —C 言語による数値計算のレシピ—. 技術評論社, 1993.
- [50] 森口繁一, 宇田川 久, 一松信. 数学公式 II —級数 · フーリエ解析—. 岩波書店, 1984.
- [51] W. Ni, J. S. Xia, E. D. Adams, P. S. Haskins, and J. E. McKisson. ³He melting pressure temperature scale below 25 mK. *J. Low Temp. Phys.*, Vol. **99**, No. 1, pp. 167–182, Apr 1995.
- [52] W. Ni, J. S. Xia, E. D. Adams, P. S. Haskins, and J. E. McKisson. ³He melting pressure thermometry. J. Low Temp. Phys., Vol. 101, No. 1, pp. 305–310, Oct 1995.
- [53] Christian Enss and Siegfried Hunklinger. Low-Temperature Physics. Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, 2005.
- [54] 石川修六. 平行平板中の超流動ヘリウム-3の B 相のスピン動力学. PhD thesis, 京都大学 大学

院理学研究科, 1989.

- [55] W. Onoe *et al.* unpublished.
- [56] Frank Pobell. Matter and Methods at Low Temperatures (Second Edition). Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, 1996.
- [57] D. Candela, N. Masuhara, D. S. Sherrill, and D. O. Edwards. Collisionless spin waves in normal and superfluid ³He. J. Low. Temp. Phys., Vol. 63, No. 5, pp. 369–399, Jun 1986.
- [58] V. M. H. Ruutu, Ü. Parts, and M. Krusius. NMR Signatures of Topological Objects in Rotating Superfluid ³He-A. J. Low. Temp. Phys., Vol. 103, No. 5, pp. 331–343, Jun 1996.
- [59] J. Kasai, Y. Okamoto, K. Nishioka, T. Takagi, and Y. Sasaki. Spontaneous annihilation of topological defects in ³He-A near the superfluid transition temperature. unpublished.
- [60] U. Parts, V. M. H. Ruutu, J. H. Koivuniemi, M. Krusius, E. V. Thuneberg, and G. E. Volovik. Measurements on the vortex sheet in rotating superfluid 3He-A. *Physica B*, Vol. 210, No. 3, 1995.
- [61] U. Parts, J. M. Karimäki, J. H. Koivuniemi, M. Krusius, V. M. H. Ruutu, E. V. Thuneberg, and G. E. Volovik. Phase Diagram of Vortices in Superfluid ³He-A. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 75, pp. 3320–3323, Oct 1995.
- [62] T. W. B. Kibble. Topology of cosmic domains and strings. J. Phys. A Math. Gen., Vol. 9, No. 8, p. 1387, 1976.
- [63] W. H. Zurek. Cosmological experiments in condensed matter systems. *Physics Reports*, Vol. **276**, No. 4, pp. 177–221, 1996.
- [64] D. I. Bradley, S. N. Fisher, A. M. Guénault, R. P. Haley, J. Kopu, H. Martin, G. R. Pickett, J. E. Roberts, and V. Tsepelin. Relic Topological Defects from Brane Annihilation Simulated in Superfluid ³He. *Nature Physics*, Vol. 4, pp. 46–49, 2008.
- [65] 本田弦. 平行平板中の超流動 ³He のテクスチャ. Master's thesis, 京都大学 大学院理学研究科, 2015.
- [66] V. B. Eltsov and M. Krusius. Lexicon of Topological Defects in ³He Superfluids. arXiv:condmat/9909221, 1999.
- [67] T. Takagi. private communication.
- [68] A. J. Leggett and S. Takagi. NMR in A-³He and B-³He: The Intrinsic Relaxation Mechanism. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 34, pp. 1424–1427, Jun 1975.
- [69] A.J. Leggett and S. Takagi. Orientational dynamics of superfluid ³He: A "two-fluid" model.
 I. Spin dynamics with relaxation. Annals of Physics, Vol. 106, No. 1, pp. 79 133, 1977.