

Title	固体H <sup>3</sup> _eのH <sup>3</sup> _e核スピン緩和における微量H <sup>4</sup> _eの効果
Author(s)	前川, 覚; 水崎, 隆雄
Citation	物性研究 (1978), 29(4): 183-198
Issue Date	1978-01-20
URL	<a href="http://hdl.handle.net/2433/89462">http://hdl.handle.net/2433/89462</a>
Right	
Type	Departmental Bulletin Paper
Textversion	publisher

# 固体 $\text{He}^3$ の $\text{He}^3$ 核スピン緩和 における微量 $\text{He}^4$ の効果

京都大学・理学部 前川 覚  
水崎 隆雄

固体ヘリウムは、原子間結合力が弱い Van der Waals 力であり、原子量が小さいため大きな零点振動エネルギーをもっている。その結果、固体ヘリウムの諸物性には零点振動が支配的な効果をもっており、一般に量子固体と呼ばれている。

量子固体特有の性質を最も明確に観測する手段として、核スピンの運動を直接測定する核磁気共鳴法 (NMR 法) を挙げる事ができる。実験的・理論的に多くの研究がなされ、Guyer 等<sup>1)</sup>により NMR に関する詳細な総合報告がなされている。

固体 He 中の格子欠陥や  $\text{He}^4$  不純物も上記の量子性を反映して特異な振舞いをする。例えば、融解点近傍でスピン緩和機構に重要な役割をする空格子点は、空格子波として振舞う事が期待されている。<sup>2-4)</sup> 又、十分低温 (1K 以下) になると、ppm 程度の極微量  $\text{He}^4$  不純物が、 $\text{He}^3$  スピン緩和に大きな影響を与える事が知られている。 $\text{He}^4$  不純物の効果は、固体  $\text{He}^3$  の bcc 相において比較的良好に調べられており、<sup>5-9)</sup>  $\text{He}^4$  不純物の影響は、i) 温度に依存するスピン格子緩和時間  $T_1$  に対する緩和機構、ii) 磁化の回復が非指数関数的な緩和を与える緩和機構、及び、iii)  $\text{He}^4$  不純物にともなう異常に大きな比熱の存在、に現われる。一方 hcp 相においては、 $\text{He}^4$  濃度を系統的に変えて調べた実験がほとんどなく、<sup>10-12)</sup>  $\text{He}^4$  不純物効果は hcp 相では解っていない。

理論的には、i) 及びそれに関連した iii) に対するモデルが挙げられている。<sup>13-15)</sup> 比較的低濃度  $\text{He}^4$  の場合の bcc  $\text{He}^3$  の実験<sup>6)</sup>を除いては理論と実験とは定量的に合わず、又、ii) の機構に関しては現在のところ何も解っていない。

これらの機構に対して、原子間の直接交換相互作用  $J$  ( $\text{He}^3$ - $\text{He}^3$ 間を  $J_{33}$ ,  $\text{He}^3$ - $\text{He}^4$ 間を  $J_{34}$  と表わす。) が重要であり、 $J$  が比較的小さい hcp 相のデータと bcc 相の結果との比較検討が  $\text{He}^4$  不純物効果の機構を明確にする上で重要と考え、hcp 相における  $\text{He}^4$  核スピン緩和の測定を行ったのでその詳細を報告する。

§2. 核スピン緩和機構の概略と Bath Model

スピン緩和時間  $T_1$  を決める緩和機構は温度により異なり，最も典型的な例を図1に示す。これらの  $T_1$  の温度

依存性を説明するために bath model が提唱された。<sup>16)</sup> 固体He中のいくつかの素励起系（熱浴）内はそれぞれ十分速く熱平衡に達するので独立の温度で記述されるが，各素励起間は，相互作用が弱くエネルギーの流れのネックになるというのが

bath model である。固体  $He^3$  の  $He^3$  スピン緩和に重要な熱浴は，ゼーマン

浴，交換相互作用浴，空格子浴，それに不純物間相互作用浴である。不純物間相互作用は，不純物  $He^4$  がまわりの  $He^3$  より質量が大きいため小さな零点振動をしており， $He^4$  の占める空間が小さいことからくる歪場で， $He^4$  間の距離を  $R_{ij}$ ，格子定数を  $\Delta$  として， $R_{ij} \gg \Delta$  の時，連続体弾性論を用いて，

$$V_I \cong V_0 \sum_{i>j} \left( \frac{\Delta}{R_{ij}} \right)^3 \tag{1}$$

と表わされる。

融解点近傍の高温領域（I-a 領域）における緩和機構は，ゼーマン浴と空格子浴を結びつけている双極子相互作用が空格子の運動にともなう  $He^3$  の運動によってゆらぎを受け，ゼーマン浴から空格子浴にエネルギーが流れるという事で説明出来る。<sup>3),4)</sup> I-b 領域では，温度が下がるにつれて空格子が少なくなり，ゼーマン浴と  $He^3-He^3$  交換相互作用浴の間でのエネルギーの流れが重要になる。ここでは，双極子場が交換相互作用にともなう  $He^3$  の運動によってゆらぎを受けることによって緩和が起こり， $T_1$  は温度に依存

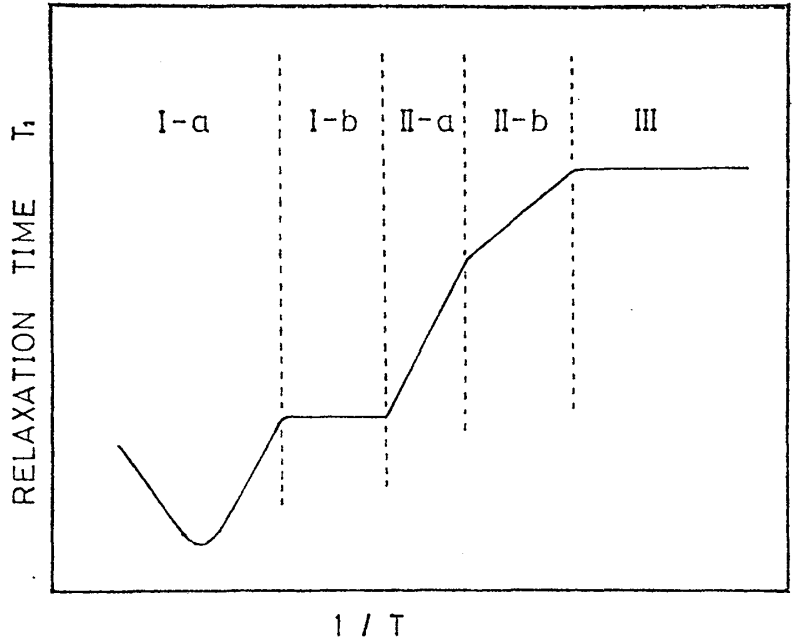


図1  $He^3$  スピン格子緩和時間  $T_1$  の温度変化

しなくなる。I-a, I-b 領域は、ゼーマン浴からエネルギーを受けとる熱浴が格子系と強く結合していることが特徴であり、又、 $\text{He}^4$ 不純物の影響をまったく受けない。

II 領域では、I-b 領域で格子系と強く結合していた交換相互作用浴が低温でフォノンが少なくなった結果、エネルギーの流れのネックとなる領域である。II-a 領域では交換相互作用浴と格子浴を結ぶ機構は二種類考えられており、Griffiths<sup>17)</sup>によって提唱されたフォノンにより交換相互作用 $J$ が変調されるという機構と、交換相互作用浴と空格子浴の間の結合が緩和を決める機構があるが、bcc  $\text{He}^3$ では後者が観測されている様である<sup>6)</sup>。II-b 領域は、 $\text{He}^4$ 不純物の影響が支配的であり、不純物 $\text{He}^4$ に関係した新しい緩和が起こる。

III 領域の緩和時間は、再び温度に依らなくなり、さらに磁化の回復が時間の指数関数でないという特異な振舞いを示す<sup>8),9)</sup>。 $\text{He}^4$ 濃度 $x$ が $10^{-4}$ 以上では $x$ に強く依存する。

我々はII-b, III 領域でhcp  $\text{He}^3$ の $T_1$ と各熱浴の大きさを種々の $x$ の試料で測定し、 $\text{He}^3$ 核スピン緩和における $\text{He}^4$ 不純物の効果について研究を行った。

### §3. 実験方法

固体 $\text{He}$ の試料は blocked capillary 法で作製し、試料は融解点近傍で約6時間焼鈍する。試料の冷却は $\text{He}^3$ 冷却器を用い、測定温度範囲は $0.4\text{K} < T < 1.5\text{K}$ である。温度測定は試料部と $\text{He}^3$ 冷却器の2ヶ所で $\text{Ge}$ 温度計を用いて行ない、温度較正は $\text{He}^3$ の蒸気圧及び固体 $\text{He}^3$ のNMR信号強度を用いて行なった。較正誤差は0.5%以内である。試料温度は、 $\text{He}^3$ 冷却器部の温度測定器の出力を $\text{He}^3$ 冷却器に巻いたヒーターにフィードバック電流を流して長時間一定温度に保つ様にした。分子容 $V_m$ は試料室下部に付けた高感度ダイヤフラム型圧力計<sup>18)</sup>で試料内の圧力を測定し、融解点の圧力 $P$ と $V_m$ の関係<sup>19)</sup>より求めた。固体 $\text{He}$ 試料中の $\text{He}^4$ 濃度は、<sup>20)</sup>実験の前後に、ガス状態の試料を質量分析器を用いて分析した。クライオスタットは $\text{He}^4$ 中の $\text{He}^3$ のNMR実験<sup>21)</sup>で用いたものと、ほぼ同じである。

パルスNMR装置はデジタル化を行ない、磁化を4けたの精度で測定し、磁化の回復を2けたの範囲で測定した。磁場はNMR磁場コントローラにより安定化しており、安定度は $10^{-5}/\text{day}$ である。 $T_1$ の測定には、2-pulse法(2P法)とmulti pulse saturation法(MPS法)<sup>9)</sup>を用いた。2P法では、 $90^\circ$ パルスを入れた後、 $t$ 時間後に再び $90^\circ$ パルス

を加え、その時の磁化の回復  $M_z(t)$  を測定する。領域Ⅱ及びⅢでは、後述の様に複数の  $T_1$  が観測されるので、毎回無限時間（最も長い  $T_1$  の5倍以上）待った後、上記の測定を行なった。MPS 法では、無限時間待った後、時間的に等間隔  $\tau$  で  $90^\circ$  パルスを加え、各パルス後の磁化を測定する。MPS 法で  $\tau$  を最も長い緩和時間よりは十分短かいが、他の緩和時間よりは十分長い様に選んでやると、各パルス後の磁化は、指数関数に従って小さくなり、最も長い緩和時間及び、格子系から浮き上がっているすべての熱浴のエネルギー一定数の和を求める事が出来る。

§ 4. 実験結果

緩和時間  $T_1$  の温度変化の典型的な例として、図2に、 $x = 4200 \text{ ppm}$ ,  $V_m = 19.4 \text{ cm}^3/\text{mol}$ , NMR 共鳴周波数,  $\omega_0/2\pi = 3.0 \text{ MHz}$  の実験結果を示す。磁化の回復の様子及び  $T_1$  の温度依存性の違いから3つの温度領域に分ける事が出来る。領域Ⅰ, Ⅱ, Ⅲは、§ 2 の分け方に従った。図2の各領域における典型的

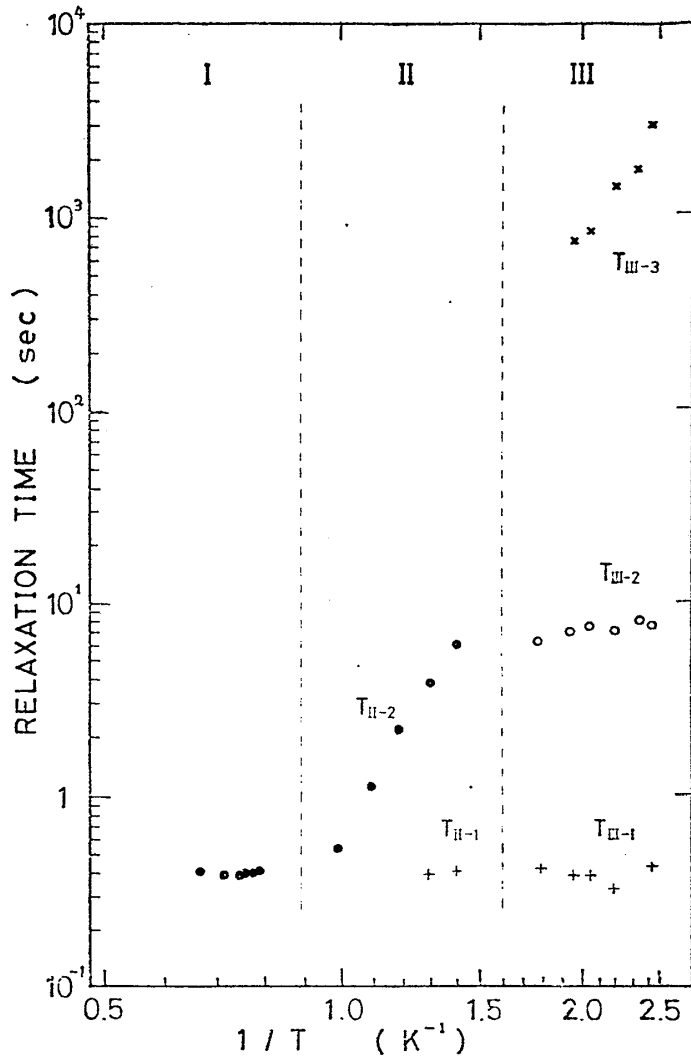
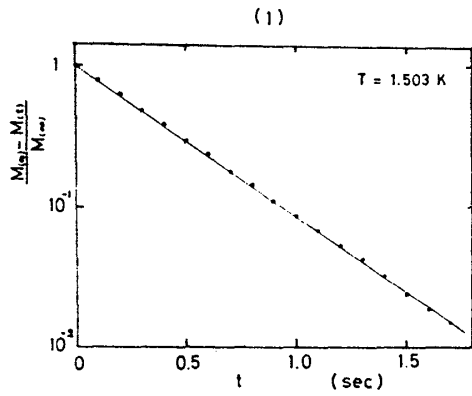


図2  $T_1$  の温度変化

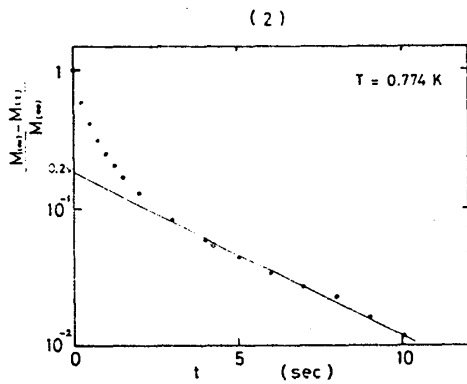
$x = 4200 \text{ ppm}$ ,  
 $V_m = 19.4 \text{ cm}^3/\text{mol}$ ,  
 $\omega_0/2\pi = 3.0 \text{ MHz}$   
 ・は  $T_{\text{II}-2}$ , + は  $T_{\text{II}-1}$ , と  $T_{\text{III}-1}$ ,  
 〇は  $T_{\text{III}-2}$ , ×は  $T_{\text{III}-3}$  を示す。  
 以下、各  $T_1$  を同じ記号で記す。

な磁化回復を図3に示す。



I 領域は, exchange plateau 領域で磁化の回復は, 図3-(1)に示す様に single exponential になる。T = 1K 以下では, II 領域が現われ 2P 法で測定される磁化の回復は, 図3-(2)に示す様に 2つの exponential の和

$$1 - \frac{M(t)}{M(\infty)} = (1-R)e^{-t/T_{II-1}} + Re^{-t/T_{II-2}} \quad (2)$$



で表わされ, 2つの緩和時間 $T_{II-1}$ ,  $T_{II-2}$  が求まる。さらに温度を下げて III 領域になると図3-(3)に示す様に磁化は最初 exponential で回復するが, その後exponential的振舞いをしなくなる。図3-(3')は同じデータを横軸 $\sqrt{t}$  でプロットし直したものであり二段目の回復は, ほぼ直線に乗る。 $T_{II-1}$ ,  $T_{II-2}$  は, 磁化の回復を

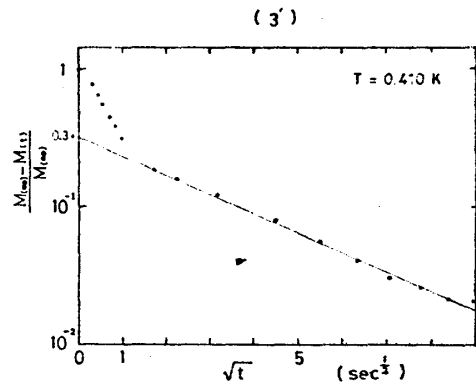
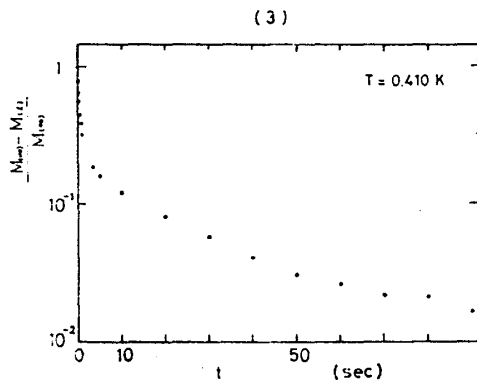


図3 各温度領域における典型的な磁化回復

$$x = 4200 \text{ ppm}, V_m = 19.4 \text{ cm}^3/\text{mol},$$

$$\omega_0 / 2\pi = 3.0 \text{ MHz}$$

$$1 - \frac{M(t)}{M(\infty)} = (1 - R') e^{-t/T_{\parallel-1}} + R' e^{-(t/T_{\parallel-2})^{1/2}} \quad (3)$$

にフィットして求めたものである。一方、Ⅲ領域では2P法で非常に長い $T_1$ の存在が確認された。この長い $T_1$ を観測するには、MPS法が有力である。この緩和時間を $T_{\parallel-3}$ として図に示している。MPS法を用いて、Ⅱ領域で測定した緩和時間は $T_{\parallel-2}$ に一致した。

以上の様に3種類の緩和機構が存在する事から、4 bath model が考えられるが、4 bath model の範囲内では、

図4に示す様な結合が、最も良く我々の実験データを説明する事が出来る。 $T_{ZX}$ ,  $T_{XY}$ ,  $T_{XL}$  は、図に示す通り各熱浴間のintrinsicな緩和時間であり、 $k_Z$ ,  $k_X$ ,  $k_Y$  は各熱浴のエネルギー一定数とする。ZはZeeman浴で、エネルギー一定数は、

$$k_Z = -\frac{N(\hbar\omega_0)^2}{4} \quad (4)$$

$\left\{ \begin{array}{l} N : \text{He}^3 \text{ 原子の数} \\ \omega_0 : \text{NMR 共鳴周波数} \end{array} \right.$

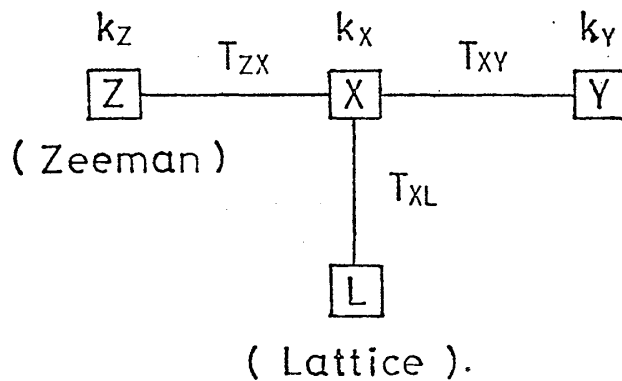


図4 4 bath model

$k_Z, k_X, k_Y$  はエネルギー一定数  
 $T_{ZX}, T_{XY}, T_{XL}$  は各熱浴間のintrinsicな緩和時間

Lは、格子(フォノン)浴を示している。X, Yは、未知のもので、実験的に測定し、後で議論する。

この様な bath model を仮定してBloch方程式を解くと、観測される緩和時間はintrinsicな緩和時間とエネルギー一定数を用いて表わされる。Ⅱ領域では、 $T_{XY}$ が他の緩和時間に比べて長い為Y浴が切り離されており、従って観測される緩和時間は、

$$T_{\parallel-1} = \frac{k_X}{k_Z + k_X} T_{ZX} \quad (5)$$

$$T_{\parallel-2} = \frac{k_Z + k_X}{k_X} T_{XL} \quad (6)$$

となる。Ⅲ領域で観測される緩和時間は、

$$T_{\parallel-1} = T_{\parallel-1} \quad (7)$$

$$T_{\parallel-3} = \frac{k_Z + k_X + k_Y}{k_X} T_{XL} \quad (8)$$

となる。また2P法では、(2)、(3)式で定義されたR、R'を測定する事が出来るが、この値は、Ⅱ領域、Ⅲ領域で等しく、

$$R = R' = \frac{k_Z}{k_Z + k_X} \quad (9)$$

と表わされる。一方、MPS法を用いて、 $\tau$ をZ浴、X浴、Y浴が互いに熱平衡に達する時間よりも十分長く、かつ $T_{\parallel-3}$ より十分短かく選んでやるとZ浴、X浴、Y浴のエネルギー一定数の和

$$k_S = k_Z + k_X + k_Y \quad (10)$$

を測定する事が出来る。

我々は、 $x$ を $1.6 \times 10^{-4}$ から $1.47 \times 10^{-2}$ の広い範囲にわたって変えて緩和時間を測定した。その結果の一部を図5～図9に示す。これらは、すべて $V_m = 19.4 \text{ cm}^3/\text{mol}$ 、 $f_0 = 3.0 \text{ MHz}$ での測定である。さらに、温度に依存しない測定量 $k_X/k_Z$ 、 $k_S/k_Z$ 、 $T_{\parallel-1}$ 、 $T_{\parallel-1}$ 、 $T_{\parallel-2}$ を各濃度に対して表にまとめた。なお、 $x \leq 1.2 \times 10^{-3}$ の

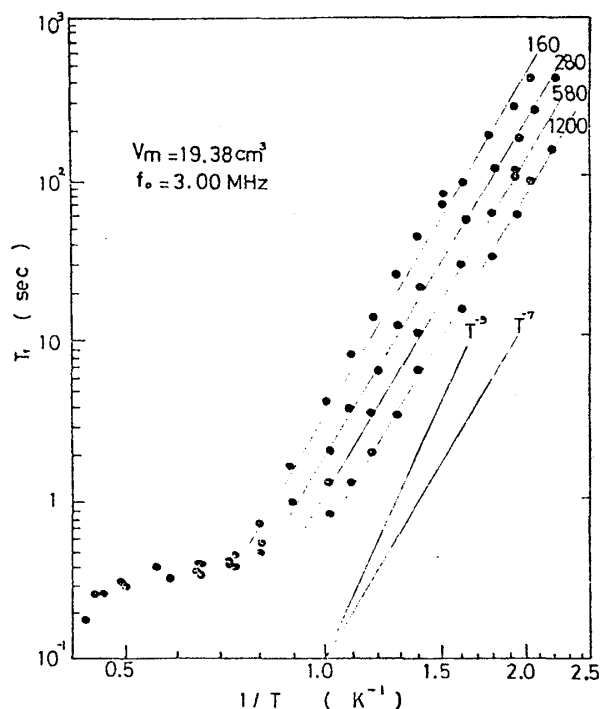


図5  $x = 160, 280, 580, 1200 \text{ ppm}$  の  $T_1$  の温度変化  
 図中のデータ点を結ぶ直線は  $T^{-7}$  に  
 対応する傾きを示し、数字は各試料  
 の  $x$  の値 (ppm) である。



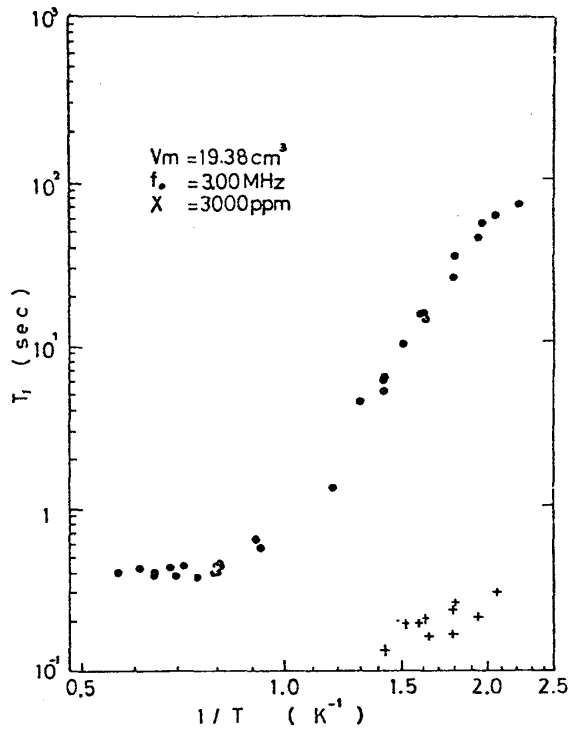


図6 x = 3000 ppm の  $T_1$  の温度変化

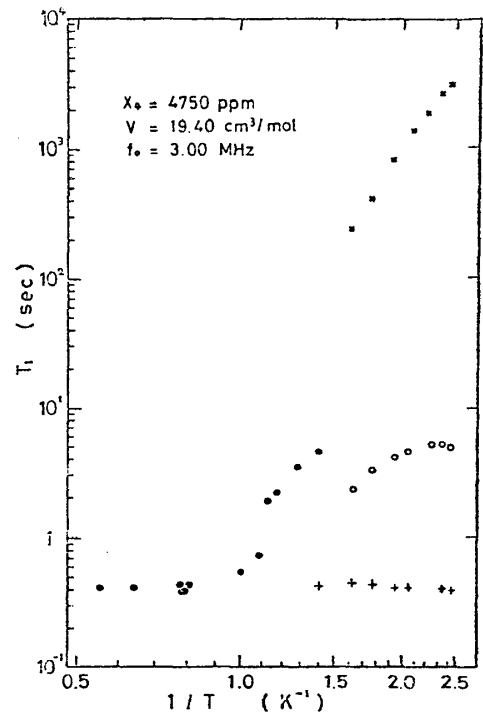


図7 x = 4750 ppm の  $T_1$  の温度変化

$k_X/k_Z$  の値は、1 MHz のデータより (4) 式の  $k_Z \propto \omega_0^2$  を使って 3 MHz の値に変換したものである。

表 1 から解かる様に、 $T_{III-2}$  は  $x$  に強く依存し、

$$T_{III-2} \propto x^{-n} \tag{11}$$

$$n = 3 \sim 4$$

である。したがって、 $x < 3 \times 10^{-3}$  の試料に対しては、 $T_{III-2}$  が我々の測定温度域では現れず、III 領域は現われない (図 5, 図 6)。一方、 $x > 1.0 \times 10^{-2}$  では、 $T_{III-2} < T_{III-1}$  となり  $T_{III-2}$  は観測されなくなる (図 9)。また、 $x < 2.0 \times 10^{-3}$  において、II 領域の  $T_{II-1}$  が 3 MHz では観測されないのは、 $k_X/k_Z$  が小さいため  $R \simeq 1$  であり (2) 式において第 2 項目しか効かないためである (図 5)。

以上の実験結果を現象論的な 4 bath model で整理すると次の様な結果を得る。

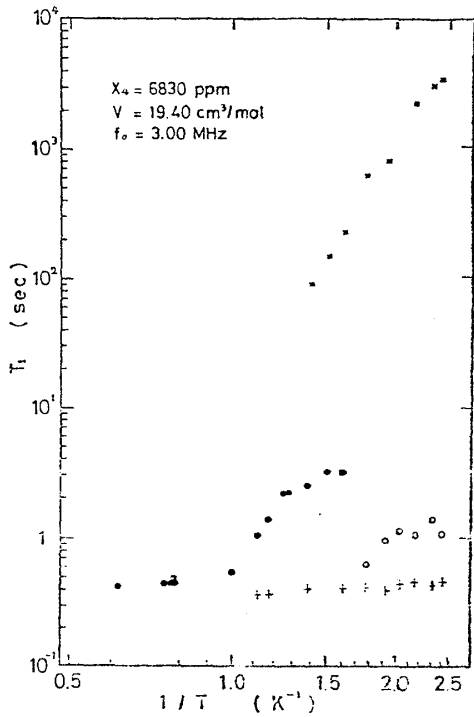


図8  $x = 6830$  ppm の  $T_1$  の温度変化  
 $T_{II-2}$  と  $T_{III-2}$  は値がとんでいる様に見えるが、これは各々の定義が(2)及び(3)式を用いる事によるものである。磁化の回復の様子は温度とともに  $T_{II-2}$  から  $T_{III-2}$  へ滑らかに移り変わる。

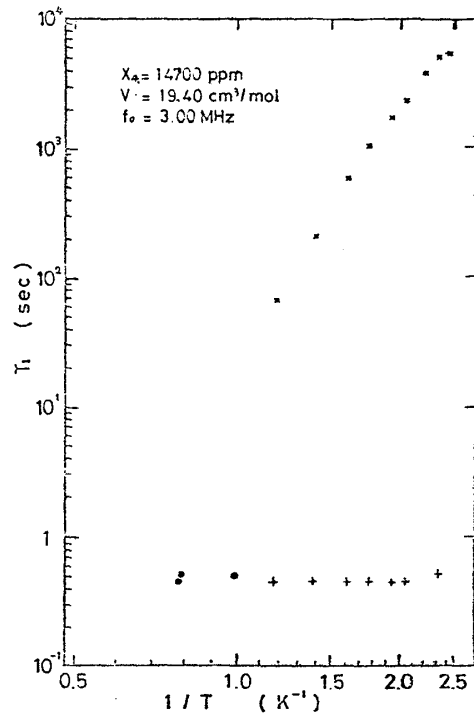


図9  $x = 14700$  ppm の  $T_1$  の温度変化

1)  $k_X/k_Z$  と、 $T_{II-1}$  より (5) 式又は (7) 式を用いて  $T_{ZX}$  を計算すると、 $T_{ZX}$  は、exchange plateau (I-b) 領域の緩和時間と等しい。

2)  $k_X$  は  $x > 1.0 \times 10^{-3}$  では  $x$  に依存し、

$$k_X/k_Z \approx 0.06 + 8.6 \times 10^4 x^2 \quad (12)$$

3)  $k_Y$  は、 $k_Y \approx 30k_X$  程度大きく、又  $x$  に依存する。

2), 3) の  $k_X/k_Z$  及び  $k_S/k_Z$  の濃度依存性を図10に示す。

4) II 領域の  $T_{II-2}$  から求めた  $T_{XL}$  と III 領域の  $T_{III-3}$  から求めた  $T_{XL}$  は温度の関数 ( $T_{XL} \propto T^{-7}$ ) としてなめらかにつながり、同じ緩和機構  $T_{XL}$  から出ていると考え

$x$ $\times 10^{-4}$	$k_X/k_Z$	$k_S/k_Z$	$T_{\parallel-1}$ or $T_{\parallel\parallel-1}$ sec	$T_{\parallel\parallel-2}$ sec
1.6	0.066*	—	—	—
2.8	0.073*	—	—	—
5.8	0.081*	—	—	—
12.0	0.11*	—	—	—
24.8	0.32	—	0.15	—
30.0	1.0	—	0.35	—
42.0	1.6	60	0.42	8.0
47.5	2.3	80	0.42	5.0
54.6	2.3	—	0.42	2.8
68.3	3.2	120	0.43	1.1
147	—	520	0.44	—

表1  $k_X/k_Z$ ,  $T_S/k_Z$ ,  $T_{\parallel-1}$  又は  $T_{\parallel\parallel-1}$ ,  $T_{\parallel\parallel-2}$  の  $x$  依存性。\*印は 1 MHz の data から  $k_Z \propto \omega_0^2$  に従って 3 MHz の値に変換した値。— は測定にかからない事を示す。

られる。 $T_{XL}$  を濃度及び温度の関数として実験式で表わすと,

$$T_{XL} = \frac{1 + 1.2 \times 10^6 x^2}{3.5 \times 10^4 x} T^{-7} \quad (13)$$

であり,  $x \simeq 1.0 \times 10^{-3}$  で極小値をとる。bcc 相において  $\parallel$  領域の  $T_{\parallel-3}$  の存在は指摘されていたが, 温度の関数として測定されたのは, これが始めてである。

- 5)  $T_{\parallel\parallel-2}$  は, 磁化の回復過程が, 時間  $t$  の指数関数ではないという特異な緩和機構であり温度によらない。 $T_{\parallel\parallel-2}$  は  $x$  に強く依存し,

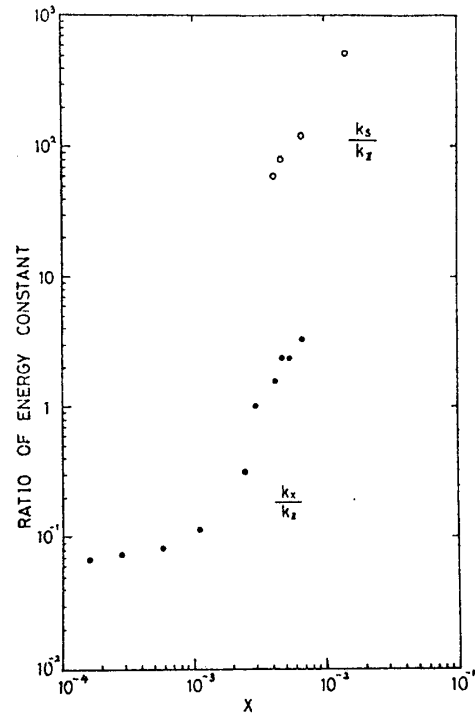


図10 エネルギー定数  $k_S/k_Z$ ,  $k_X/k_Z$  の  $x$  依存性

$$T_{\parallel-2} \propto x^{-(3\sim 4)} \quad (14)$$

である。なお hcp 相で  $T_{\parallel-2}$  を観測したのは、本論文が最初である。

## §5. 検 討

我々は、現象論的な 4 bath model を用いて、 $T_1$  の分類分けと各熱浴のエネルギー定数を求めた。本章では、各熱浴がどのようなものであるかという事と、各熱浴を結ぶ緩和機構について検討する。

### 1) $T_{XL}$ の緩和機構

$T_{XL}$  は X 浴から格子系へ緩和する時の時定数であり、温度及び He<sup>4</sup> 濃度に依存する事から、He<sup>4</sup> 不純物とフォノンとの散乱が関与したものである事が解る。この機構に対しては、いくつかの理論が提示されている。まず、He<sup>4</sup> 不純物の mass fluctuation wave という考えに基づいた Guyer 等<sup>13)</sup> の理論、及び Bernier 等<sup>14)</sup> の理論がある。これに対して Nakajima 等<sup>15)</sup> は、逆に He<sup>4</sup> 不純物は He<sup>3</sup> 固体中で局在化しているというモデルから出発して、He<sup>4</sup> 不純物によるフォノン散乱を計算した。これらの理論と我々の実験結果とを比較してみよう。上記3つの理論において、 $\omega_0 \rightarrow 0$  の場合、それぞれ、

$$\frac{1}{T_1} \simeq \left[ \frac{x}{1+x+(V_0/J)^2 x^2} \right] 2 \times 10^{13} T \left( \frac{T}{\theta_D} \right)^6 \quad (15)$$

( Guyer 等 )

$$\frac{1}{T_1} \simeq \left[ \frac{x}{1+5x/3+5.3(V_0/J)^2 x^2(1-x)} \right] 9.3 \times 10^{18} T \left( \frac{T}{\theta_D} \right)^8 \quad (16)$$

( Bernier 等 )

$$\frac{1}{T_1} \simeq \left[ \frac{x}{1+9.4(V_0/J)^2 x^2} \right] 1.6 \times 10^{18} T \left( \frac{T}{\theta_D} \right)^8 \quad (17)$$

( Nakajima 等 )

となる。ここで  $V_0$  は (1) 式で定義され、又、 $J_{34} \simeq J_{33} \equiv J$  と仮定した。 $\theta_D$  はデバイ温度である。一方、我々の得た実験式 (13) は、 $V_m = 19.4 \text{ cm}^3/\text{mol}$  における  $\theta_D = 38\text{K}$ <sup>22)</sup>

を用いると、

$$\frac{1}{T_1} \simeq \left[ \frac{x}{1 + 1.2 \times 10^6 x^2} \right] 9 \times 10^{13} T \left( \frac{T}{\theta_D} \right)^6 \quad (18)$$

となる。

各理論とも  $x$  依存性はほぼ同じであり、 $V_0$  を 150 MHz 位 ( (17) 式を用いた ) に選べば実験式 (18) の  $x$  依存性を説明する事が出来る。温度依存性は、(15) 式と一致し、又係数も数倍の範囲で一致している。

一方、理論どうし比較すれば、(16) 式と (17) 式はよく一致し、(15) 式のみ異なっている。Guyer 等の用いた Mass fluctuation model は、Nakajima 等によりその矛盾点が指摘されており、その意味で実験と (15) 式との一致は、どう解釈すればよいのかわからない。

他の hcp  $\text{He}^3$  の実験でも、 $x$  依存性のデータはないが、温度依存性に関しては、いずれも  $1/T_1 \propto T^7$  であり、bcc  $\text{He}^3$  の  $1/T_1 \propto T^9$  とは異なっている。

## 2) $T_{\parallel-2}$ の緩和機構

磁化の回復が時間  $t$  の非指数関数的に振舞う  $T_{\parallel-2}$  の緩和機構は、当然 2 つの熱浴間で単純な Bloch 方程式に従う緩和が起こっているのではない事を示している。このような緩和は、NMR の例としては極めて稀であり、常磁性不純物を含む試料などにその例が報告されているにすぎない。<sup>23)</sup> しかし固体  $\text{He}^3$  の場合には明らかに常磁性不純物の存在で  $T_{\parallel-2}$  の機構を説明する事は出来ない。Giffard 等<sup>8)</sup> は、非常に  $\text{He}^4$  不純物の少ない bcc  $\text{He}^3$  で実験を行ない、スピンの自己拡散の効果を考えて、磁化回復を一次元の拡散方程式から求め、実験と比較した。

A) 我々は三次元の場合に拡張して実験との比較検討を行った。局所磁化  $m(r, t)$  を空間と時間の関数と考えて、 $m(r, t)$  は拡散方程式

$$\frac{\partial m(r, t)}{\partial t} = D_E \nabla^2 m(r, t) \quad (19)$$

に従うとする。 $D_E$  はエネルギー拡散係数である。<sup>1)</sup> (19) 式を適当な境界条件のもとに解くと、

$$M(t) = \int m(r,t) dV \quad (20)$$

が測定する磁化を与える事になる。

◎エネルギー吸収源が面でできている場合。

空間を半径  $R_0$  の球面で分割し、球内のエネルギーが球面に拡散していくモデルを考えてみよう。境界条件を  $m(R_0, t) = m_0$ 、初期条件を  $m(r, 0) = 0$  として解くと、

$$1 - \frac{M(t)}{M(\infty)} \simeq \exp(-\sqrt{t/T_{1D}}) \quad (21)$$

となり、磁化回復の形は実験とあう。ここで時定数  $T_{1D}$  は、

$$T_{1D} = \frac{\pi R_0^2}{36 D_E} \quad (22)$$

である。 $x = 4.2 \times 10^{-3}$  の実験データと比較してみると、 $T_{1D} \simeq 10\text{s}$ 、 $D_E \simeq 10^{-4} \text{cm}^2/\text{s}$  より、 $R_0 \simeq 4\mu$  となる。固体 He 中においてこの様な面を作るものとしては、小角度粒界や結晶不整合等が考えられる<sup>8)</sup>。しかし固体 He の X 線回析実験<sup>24)</sup>や熱伝導度の測定<sup>25)</sup>から固体 He は数  $\text{mm}$  の大きさの結晶を作っている事が知られており、数  $\mu$  の面の存在は考えられず、又、 $T_{\parallel-2}$  や  $k_Y$  の  $x$  依存性を説明する事も難しい。

◎エネルギー吸収源が局所的な核で出来ている場合。

半径  $R_0$  の球の中心に、エネルギー吸収源として半径  $r_0$  の核がある場合を考えてみよう。境界条件を  $m(r_0, t) = m_0$ 、 $\partial m(r, t)/\partial r|_{r=R_0} = 0$ 、初期条件を  $m(r, 0) = 0$  として解くと<sup>26)</sup>

$$1 - \frac{M(t)}{M(\infty)} \simeq \exp[-(t/T_{1D})] \quad (23)$$

となり、この場合は磁化の回復は exponential になり、 $T_{1D}$  は、

$$T_{1D} = \frac{R_0^2}{3 D_E} \left(\frac{R_0}{r_0}\right) \quad (24)$$

である。

磁化回復の形は実験に合わないが、 $r_0 \simeq \text{数 } \text{\AA}$  として  $R_0$  をみつめると、 $R_0 \simeq \text{数 } 100 \text{\AA}$

程度である。ちなみに、核が  $\text{He}^4$  3個からなる cluster と考えると、 $R_0 \sim 200 \text{ \AA}$  である。このモデルは、磁化回復の形が non exponential でない事の他に、核に実験値の様な大きなエネルギー一定数  $k_Y$  を担わせられない困難がある。

B)  $\text{He}^4$  不純物間相互作用浴の熱的非平衡<sup>27)</sup>

$\text{He}^4$  濃度が増加するにつれて、(1)式で与えられる  $\text{He}^4$  間の相互作用の平均の大きさ  $V_0 x$  は大きくなり、 $J_{34}$  よりも大きくなってしまう。x が十分に小さい場合は、 $\text{He}^4$  相互作用浴の熱平衡の時定数は  $J_{34}^{-1}$  程度と考えられ非常に速く、1) で考察された機構も成立するが、逆に  $V_0 x \gg J_{34}$  の場合は問題がある様に思われる。すなわち、この場合には、空間的に  $\vec{\nabla} V_1 \cdot \vec{\Delta} \ll J_{34}$ 、( $\vec{\Delta}$  は格子ベクトル) を満す相互作用の部分のみが、 $k_X$  及び  $T_{XL}$  の緩和に寄与し、 $T_{\parallel-2}$  は残った相互作用浴の内部熱平衡の時定数に関連したものであるのではないかと考えられるのである。これについては、後述の  $k_X$ ,  $k_S$  の大きさとも関係があり、さらに検討を行なっている。

3) エネルギー一定数  $k_X$ ,  $k_Y$

本章 1) で議論した理論によれば、いずれの理論も、

$$k_X/k_Z \simeq \frac{4.5 (\hbar J)^2 + 28 (\hbar V_0)^2 x^2}{(\hbar \omega_0)^2} \quad (25)$$

となり、1) で求めた  $V_0 \simeq 150 \text{ MHz}$  及び  $V_m = 19.4 \text{ cm}^3/\text{mol}$  の  $J = 0.3 \text{ MHz}$  を用いれば、我々の実験で求めた  $k_X$  の x 依存性 ((12)式) を説明する事が出来る。

$k_Y$  はだいたい  $k_Y \simeq 30 k_X$  位大きいのが、2)-B) で述べた様な考え方に従って  $k_Y$  を  $\text{He}^4$  間の相互作用によるエネルギー一定数の一部と考えて、

$$k_Y \simeq -7.1 (\hbar V_{0Y})^2 N x^2 \quad (26)$$

を用いて  $V_{0Y}$  を求めると、 $V_{0Y} \simeq 1000 \text{ MHz}$  となる。この値は  $\text{He}^4$  固体中の  $\text{He}^3$  の NMR より求めた  $V_0 \simeq 2500 \text{ MHz}$ <sup>21)</sup>、理論値  $V_0 \simeq 2000 \text{ MHz}$ <sup>15)</sup>、又  $\text{He}^3$ - $\text{He}^4$  混合固体の相分離より求められる値  $V_0 \simeq 2000 \text{ MHz}$ <sup>28)</sup> 等と比較して大きすぎる値ではない。

§6. おわりに

1K 以下の低温度域で、 $\omega_0 / 2\pi = 3 \text{ MHz}$  で、 $V_m = 19.4 \text{ cm}^3/\text{mol}$  の hcp 固体  $\text{He}^3$  の

固体 $\text{He}^3$ の $\text{He}^3$ 核スピン緩和における微量 $\text{He}^4$ の効果  
スピン格子緩和時間に対する不純物 $\text{He}^4$ の効果を広範囲に  $x$  を変えて ( $1.6 \times 10^{-4} \sim$   
 $1.5 \times 10^{-2}$ ) 系統的に調べた。実験データを 4 bath model で解析し, 3 種類の緩和時間  
とエネルギー定数  $k_X, k_Y$  を分離し実測した。

現在のところ, これらの実験結果を説明する理論はない。

なお, 一部の試料で  $T_1$  とエネルギー定数の  $V$  及び  $\omega_0$  依存性を測定し, 4 bath model  
で予測される結果を得た事を付記しておく。

## 謝 辞

本研究は京都大学理学部, 平井章, 平良豊, 楠本正, 各氏との共同研究である。日頃  
から色々な検討や有益な助言をいただいている恒藤研究室の各氏, 特に恒藤敏彦先生,  
山下芳文氏に感謝致します。質量分析器を使用させていただき指導して下さった京都大  
学工学部原子核工学科の麻田亀雄先生, また多量の液体ヘリウム供給の便宜をはかって  
下さった極低温研究室の西下博紹氏, 春日井昇氏にお礼申し上げます。

## 参 考 文 献

- 1) R. A. Guyer, R. C. Richardson and L. I. Zane ; Rev. Mod. Phys. **43**, 532 (1971)
- 2) R. A. Guyer ; J. Low Temp. Phys. **8**, 427 (1972)
- 3) T. Mizusaki, Y. Hirayoshi, S. Maekawa and A. Hirai ; Phys. Lett. **50A**, 165 (1974)
- 4) 平井 章, 水崎隆雄 ; 日本物理学会誌 **30**
- 5) M. G. Richards, J. Hatton and R. P. Giffard ; Phys. Rev. **139**, A91 (1965)
- 6) R. P. Giffard and J. Hatton ; Phys. Rev. Lett. **18**, 1106 (1967)
- 7) M. Bernier ; J. Low Temp. Phys. **3**, 29 (1970)
- 8) R. P. Giffard, W. S. Truscott and J. Hatton ; J. Low Temp. Phys. **4**, 153 (1971)
- 9) M. Bernier and G. Deville ; J. Low. Temp. Phys. **16**, 349 (1974)
- 10) R. L. Garwin and H. A. Reich ; Phys. Rev. Lett. **12**, 354 (1964)
- 11) B. T. Beal, R. P. Giffard, J. Hatton, M. G. Richards and P. M. Richards ; Phys. Rev. Lett.  
**12**, 393 (1964)
- 12) W. N. Yu and H. A. Reich ; Solid State Comm. **7**, 1521 (1969)
- 13) R. A. Guyer and L. I. Zane ; Phys. Rev. Lett. **24**, 660 (1970)  
R. A. Guyer ; Phys. Rev. **A5**, 2541 (1972)



- 14) M. Bernier and A. Landesman ; J. Phys. 32 C5a-213 (1971)
- 15) K. Nakajima, T. Tsuneto and Y. Yamashita ; J. Phys. Soc. Japan 37, 1291 (1974)
- 16) R. L. Garwin and A. Landesman ; Phys. Rev. 133A, 1503 (1964)
- 17) R. B. Griffiths ; Phys. Rev. 124, 1023 (1961)
- 18) G. C. Straty and E. D. Adams ; Rev. Sci. Instr. 40, 1393 (1969)
- 19) E. R. Grilly and R. L. Mills ; Ann. Phys. 8, 1 (1959)
- 20)  $\text{He}^4$  は  $\text{He}^3$  に比べて零点振動が小さいため，試料容器内壁には  $\text{He}^4$  が集まり易いといわれている。今，容器内壁の一層目はすべて  $\text{He}^4$  におおわれていると仮定しても，我々の使用しているクライオスタットの場合， $x \gg 1$  ppm であれば，ガス濃度を試料の濃度と考えてもよい。
- 21) Y. Hirayoshi, T. Mizusaki, S. Maegawa and A. Hirai ; J. Low Temp. Phys. 30, 137 (1978)
- 22) H. H. Sample and C. A. Swenson ; Phys. Rev. 158, 188 (1967)
- 23) W. E. Blumberg ; Phys. Rev. 119, 79 (1969)
- 24) A. F. Schuch and R. L. Mills ; Phys. Rev. Lett. 8, 469 (1962)
- 25) B. Bertman, H. A. Fairbank, R. A. Guyer and C. W. White ; Phys. Rev. 142, 79 (1966)
- 26) E. Fukushima and E. A. Uehling ; Phys. Rev. 173, 366 (1968)
- 27) 恒藤敏彦 ; 私信
- 28) M. E. Bernier ; The Proc. of the 13th International Conference on Low Temp. Phys. (Colorado) p79 (1972)