

# 固体 He<sup>3</sup> 奇特的磁性

M. C. Cross      D. D. Osheroff

低密度固体 He<sup>3</sup> 有两个不同的磁有序相,对它的研究可增加我们对核磁性及量子固体中原子交换的了解。

固体 He<sup>3</sup> 的核磁有序为极低温物理学家们提供了一个在量子自旋系统中研究磁合作现象的独特机会。低密度的固体 He<sup>3</sup> 中有两个已知的极不相同的磁性相。密度较高时,可能存在着铁磁相。低密度 He<sup>3</sup> 的磁有序温度接近 1 mK,利用现代的绝热去磁技术,这个温度并不难达到。今后几年,这方面的实验和理论研究将会大大增加我们对核磁性的了解。

固体 He<sup>3</sup> 中,核自旋磁矩的有序并非来自磁偶极相互作用,而是来源于相邻格点上 He 原子的跳跃 (hopping),我们称之为“交换”。交换理论早在 20 多年前就已提出,相当多的实验结果支持这种观点。尽管如此,我们对固体 He<sup>3</sup> 中核自旋有序的了解还远不完全。事实上,我们对超流 He<sup>3</sup> 和自旋有序固体 He<sup>3</sup> 认识的快慢是很不相同的。对实验研究来说,超流是理想的材料,没有杂质,没有晶格缺陷,热导特别好。用以解释 He<sup>3</sup> 超流的理论也用不着去创造,只要借用 BCS 理论即可。研究固体 He 的实验家们为了把这种热导很差的材料冷到转变温度以下,需要克服巨大的困难。同时,也没有合适的理论方法去处理这种高度量子力学性质的体系。但另一方面,固体 He<sup>3</sup> 是很有用的一种典型的磁性系统,极接近于真正的海森伯体系,即自旋间的有效相互作用是各向同性的,而且交换作用是热力学上唯一重要的相互作用。与此相对照,讨论电子的磁性时,由于存在着许多其它可比拟的相互作用(如交换作用、磁偶极相互作用、自旋-轨道耦合等)和各向异性,从而使问题复杂化。金属(如铜)的核磁性则涉及到导电电子的间接相互作用,以及偶极相互作用。固体 He<sup>3</sup> 最重要的优点在于自旋有序发生在很低的温度,因而自旋系统完全地支配着体系的热力学及输运性质,而这一温度又不是特别低,

只需借助于现代的致冷技术就容易达到。

## 交 换 作 用

在固体 He<sup>3</sup> 中,由于核的质量轻,且原子间相互作用势弱,原子位置的交换起着重要的作用。即使温度极接近于绝对零度,He<sup>3</sup> 也不会小于 30atm 以下固化。在熔解压力下,固体 He<sup>3</sup> 中的原子围绕其格点位置大幅度振动,平均位移可达最近邻的三分之一。粗略地讲,每四万次零点振动中,近邻原子会有一次位置的交换。一旦原子脱离特定的格点,我们必须认真地考虑其不可分辨性及泡利不相容原理带来的限制。为了了解原子交换如何导致核自旋有序,考虑一最简单的过程。假定在低密度的体心立方 He<sup>3</sup> 中,两个最近邻的 He<sup>3</sup> 原子交换位置。由于每个 He<sup>3</sup> 原子有净自旋 1/2,因而是费米子,波函数对交换两个粒子是反对称的。这种波函数可写成自旋部分和轨道部分相乘,其中之一要是奇函数。奇轨道的波函数有结,其动能要比能量最低的偶波函数高。这样,在最低能态,波函数的自旋部分应是奇的。对整个晶格言,要求最近邻自旋是反平行的(反平行单态),从而给出两个简单立方格子套在一起的反铁磁结构,通常称作“正常的反铁磁”相。

我们谈及某个原子的自旋取向,只是作为一种标记。当该原子在晶格内移动时,其核自旋不变。实际上更方便的是给出每个格点,而不是每个原子的自旋取向(向上或向下),以此来描述系统的状态。

作为对最近邻对交换的自旋系统的完全描述,理论上研究得很多的是最近邻自旋 1/2 的海森伯模型。其有效哈密顿量为

$$H = 2J \sum_{i,j} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j, \quad (1)$$

其中  $S_i$  是  $i$  位置上的自旋。式中求和遍及所有的最近邻对。在六十年代,人们相信,只有最近邻对的交换是显著的。对  $\text{He}^3$  磁性的主要兴趣,只剩下作为一个简单的教学用的模型了。

然而,处在无序相的固体  $\text{He}^3$  的行为并不能用这个简单的一参数模型定量地解释。过渡到反铁磁相一级相变的特征,以及在较高场下磁化强度的增强也和这个模型不一致。 $\text{He}^3$  行为严重偏离这一简单模型最直接的实验证据来自 1979 年的核磁共振实验,实验甚至表明  $\text{He}^3$  的低温相不是立方相。

### 核磁共振 (NMR)

事实表明, NMR 方法对于研究  $\text{He}^3$  有序相是极有效的工具,我们对超流相的了解在很大程度上也来源于这种实验。因为这是一种容易控制的与被测系统不接触的实验方法。对测量而言,共振频率处在很理想的范围,线宽特别窄,容易测准。最重要的原因可能是共振频率相对于自由自旋拉摩进动频率的频移,并非来源于大的和有序有关的能量(交换能、费米能等),仅来源于很小的直接相互作用的磁偶极能(数量级约为  $0.1 \mu\text{K}/\text{原子}$ , 并与两原子自旋的相对取向及位移矢量有关)。只有在许多原子的集体运动中,这个小的能量才不会被热涨落所淹没。因而, NMR 是对合作态进行实验研究的方便手段,同时又不影响系统的热力学状态。对低场相最早进行 NMR 实验的是 Florida 小组和 Bell 小组,他们是在 1979 年几乎同时独立进行的。

两个小组都看到了 NMR 频率对拉摩频率有大的频移。频移清楚地表明,低场相不能有立方对称。对于立方对称,产生频移的偶极能的各向异性,在一级近似下为零。

Florida 小组用绝热固化液体的方法冷却液体  $\text{He}^3$  和固体  $\text{He}^3$  的混合物,因而所测的是在有序温度附近的多晶样品。而 Bell 小组采用核绝热去磁,可在低到  $300 \mu\text{K}$  的温度下维持两天,并在此基础上还发展了一种生长单晶固体的方法,可以进行更好的研究。

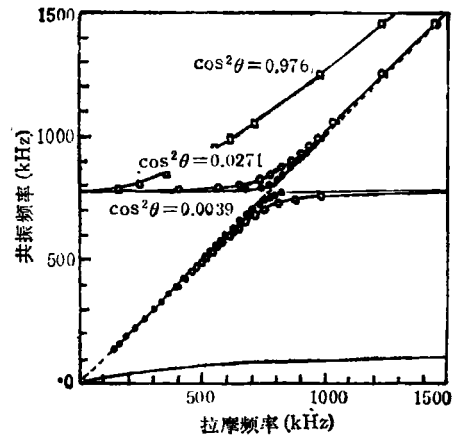


图 1 单晶体  $\text{He}^3$  在  $0.4 \text{ mK}$  三个畴的核磁共振谱(每个畴中的两个模用同样的符号表示。实线是取  $Q_0 = 730 \text{ kHz}$  的理论计算结果)

图 1 给出在  $0.4 \text{ mK}$  附近固体  $\text{He}^3$  单晶的 NMR 谱。共有三对共振,每对中有一支频率高于拉摩频率,另一支低于拉摩频率。这些共振明显地来源于单晶中三个分立的磁畴。尽管做了很多努力来生长好的单晶,避免乱真信号的出现,但总是观察到三个高频共振。这种仅存在三个畴取向的事实,表明子格子对称轴仅可沿立方结构的三个主轴取向,实际的排列是四方相,而不是立方相。

从 NMR 谱可精确地推测自旋的排列和子格子结构的对称性。根据 NMR 的数据,还可建立一简单的定量的理论,理论仅包含一与温度有关的参量  $Q_0$ , 它用来量度在未经扰动的反铁磁态中偶极能的大小。对每个子格子,理论给出两个共振模分别为下式的两个平方根:

$$\omega^2 = \frac{1}{2} [\omega_L^2 + Q_0^2 \pm \sqrt{(\omega_L^2 - Q_0^2)^2 + 4\omega_L^2 Q_0^2 \cos^2 \theta_i}] \quad (2)$$

式中  $\cos \theta_i$  是畴的对称轴和磁场夹角的余弦,并非已知数,  $\omega_L$  是拉摩频率。如三个畴的轴相互垂直,三个  $\cos^2 \theta_i$  之和应为 1。(2) 式的根用实线画在图 1 中。分别在两个方向上加外场,用共振方法可以唯一地确定晶体的取向,其精度比得上 X 光衍射方法。由于  $Q_0$  依赖于温度,在有序无序相转变处约为  $520 \text{ kHz}$ , 绝对零度时

约为 800 kHz。在其它实验[如测量磁子(自旋波)热导,或观察有可能存在的磁子第二声]中,这种共振又可作为  $\text{He}^3$  自旋系统的无接触温度计。

为了确定磁结构,需要看哪一种格子结构比较符合 NMR 实验的结果。唯一满足所有要求的结构是:自旋平面垂直于  $(1, 0, 0)$  方向,  $N$  个平面自旋向上,相继的  $N$  个平面自旋向下,如此重复。我们用  $uNdN$  来标记,这是  $upN$  down  $N$  的缩写。 $u1d1$  是普通的立方反铁磁体,因而最简单的显然是  $u2d2$  结构(图 2)。要强调的是 NMR 只能给出磁结构总的对称性,并不能唯一地确定微结构。

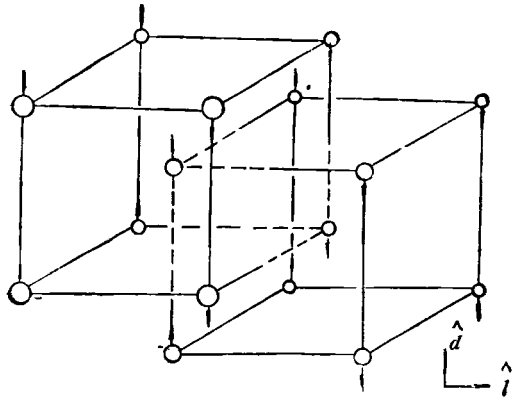


图 2 低场固体  $\text{He}^3$  的  $u2d2$  反铁磁态 ( $\hat{d}$  是自旋对称轴,  $\hat{l}$  是晶格对称轴)

早在低场相 NMR 实验进行之前,法国 Grenoble 小组已开始试图用极化中子散射来测量  $\text{He}^3$  的磁结构。经过五年的努力,观察到相应于  $(1/2, 0, 0)$  波矢的磁 Bragg 峰,当晶体热到 Néel 温度  $T_N$  以上时,峰消失。在中子束的照射下,晶体在  $T_N$  以下仅能维持 500s,这时只有约 50 个额外的中子散射到  $(1/2, 0, 0)$  Bragg 峰。Grenoble 小组未探测到其他的散射方向。尽管中子实验看来支持低场相为  $u2d2$  结构的观点,但这个结论还是初步的。

### 其他实验

图 3 给出在溶解压力下固体  $\text{He}^3$  的磁场-温度相图,表明  $\text{He}^3$  可具有多种磁性。反铁磁相

的磁化强度比无序的顺磁相小,它在相图中只占一小角,即在图 3 中所标示的 Néel 温度(约 1mK)和临界场强 0.4T 以下。

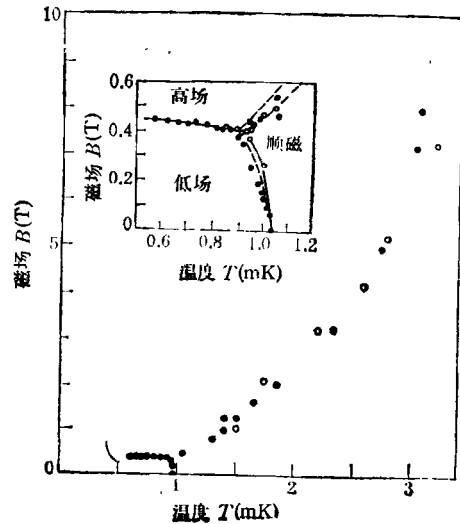


图 3 在溶解压力下固体  $\text{He}^3$  的实验相图

Florida 小组发现,在低温下当磁场高于临界场  $H_{c1}$  (约 0.4T) 时,磁化强度急剧增加到顺磁值之上,这是另一个在高场下的有序相。在 0.4T 时,磁化强度大约是饱和值的 3/5。这是铁磁和反铁磁两种相反倾向同时存在的确证。由于存在两种相反的效应,可以想象,  $H-T$  相图应敏感于其它外界参量。然而相反,人们发现当加压改变样品密度时,总能量确实变化很快,但其他所有的量似乎都以同样的方式按标度律变化。具有这种标度行为的原因还不太清楚。人们估计  $H_{c1}$  的低温值的变化也许会很不一样,但还没有测量它与密度的关系。

对高场相性质较好的了解极有助于对磁相互作用的认识,但这是一个很困难的实验。仍然没有确切的实验证据说明这个相是一个增强的顺磁体,或还有某种子格子结构(子格子是铁磁的),或在垂直于外场方向有自发的对称性破缺(可称作横反铁磁体)。在单晶高场相中已进行了 NMR 测量,但由于磁化强度高,实验必须灵敏到能测量出比样品退磁场引起的频移低两个数量级的频移。这些实验表明,如果在偶极能中存在有各向异性,必定比低场相的至少小

一个数量级,这意味着高场相具有立方对称。近期高场相比热的测量得到  $T^3$  规律,这与横反铁磁中存在自旋波一致。如果没有横向有序,比热应按指数律变化,并且数值很小。当然这些实验应做到更低的温度。D. Greywall 测量了 1Ta 下的比热,得到  $\lambda$  型的反常,这是从顺磁相到高场相为二级相变的确证,这也与存在横反铁磁有序一致(图 4)。其他次要的证据(如非常快的磁弛豫)说明有序存在,然而仍无表明有序性质的直接的证据。令人遗憾的是这个相的中子散射实验尚未进行。

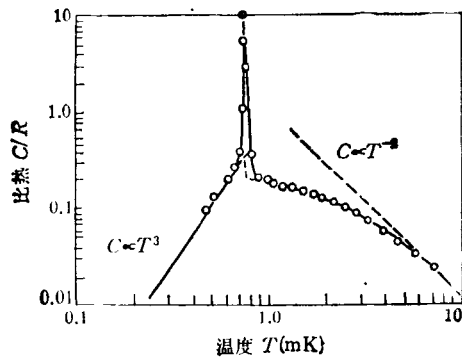


图 4 固体 He<sup>3</sup> 在接近塔解压力下的比热

## 理 论

He<sup>3</sup> 中的磁有序来源于晶格中由于零点运动而改变位置的原子遵从泡利原理所产生的效果,但原子移动的细节并不清楚。

在实验上取得重大进展的同时,一些理论家们提出了多重交换模型。在固体 He<sup>3</sup> 中,原子并不能看成是点粒子,而是接近于挤在一起的有大小的刚球。这样,由于自由空间有限,邻近两原子相互交换的可能性大大减小。晶格中几个原子构成原子环,环上原子依次循环交换,避免了自由空间不够的问题,尽管由于粒子交换时移动距离较大,交换作用减弱,但环交换仍然是起主要作用的过程。

M. Roger 等提出一简单的交换哈密顿量,它至少能在定性上很好地解释 He<sup>3</sup> 固体的磁性。模型哈密顿量由 3 自旋环交换(包括两个最近邻跳跃和一个次近邻跳跃,见图 5),和一

特别选择的 4 自旋环交换(只包括在同一晶面上的最近邻跳跃,见图 5)组成。其系数给出了交换项的强度。

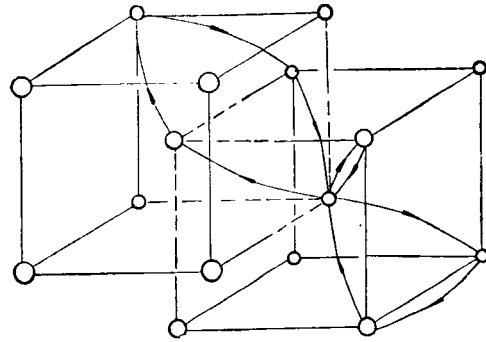


图 5 多重交换示意图(图中给出最近邻的 2 自旋, 3 自旋和在同一晶面上的 4 自旋的交换)

该模型能立即说明固体 He<sup>3</sup> 中同时存在着铁磁和反铁磁两种倾向之间的对抗。作为泡利原理的直接结果,偶数个原子的环交换给出反铁磁的自旋磁相互作用,奇数导致铁磁相互作用。适当选择 3 自旋和 4 自旋交换项的相对强度,所得到的相图和实验给出的极为相似。该模型还特别给出了低场相为 u2d2 相,并预言当磁场加强时,这个相会转变到赝铁磁相,磁化强度约为饱和值的 2/3。模型对赝铁磁相的解释特别漂亮。这个相和正常反铁磁相有相同的子格子结构,因而没有磁偶极各向异性。但自旋是相互倾斜的,而不是相互反平行的,因而零场下有净磁矩。这个态被称作斜的正常反铁磁体。

定量地检验多重交换哈密顿量原则上是可能的。首先与较高温度的热力学数据拟合,得到耦合常数,然后再计算低温性质。不幸的是第一步尽管在理论上很容易,但在实验上却碰到困难。在高温下,相互作用效果小,理论好用,但实验上很难区分出小的改正。第二步在实验上是很确定的,但在理论上又极为困难,除经典平均场理论外,还没有任何可信的结果。当场强高到  $H_c$  时,高场相的饱和磁化强度达到其饱和值是一例外。上临界场值可用平均场理论精确地确定。然而大的量子涨落会在经典理论中引进大约高达 50% 的误差。

到目前为止,多重交换模型对于低温性质还未能给出任何超出经典平均场理论的可靠的预言。因而,从实验与经典平均场理论预言之间的差别,还难于说明模型在概念上是否有缺陷。和只包括3自旋及4自旋交换模型相比,差别最大的是临界场 $H_c$ 。实验上它相当低,约0.4T。相反,Néel温度的热能相当于在1.4T场强下自旋的磁能,自旋交换理论给出 $H_c$ 为1.2T。这三倍之差看来无法由经典结果的量子改正来弥补。如图6(b)所示,附加最近邻交换,可使临界场下降,但在较高温度下会出现实验上并未观察到的附加的有序相。

当为拟合数据引入更多的交换类型时,多重交换模型在概念上存在的主要问题会变得更加严重。这些问题是:如果把交换率,看成是由于隧道或空间效应使相对于零点振动频率减小 $10^4$ 倍的频率,那末可以得到,对不同的过程,交换强度的减小十分不同。这样仅有一个交换参数是主要的,两个或三个交换常数有相近的数值是不合理的。加之,不同的交换过程,由于在空间的分布和路径长短的不同,应随体积有不同的变化。看来越来越清楚,如果多重交换哈密顿量能很好地唯象描述 $He^3$ 的磁性,在微观尺度内一定还有附加的物理内容,例如晶格的某种涨落可作为一些不同交换过程的媒介。D. M. Cepeley等近来通过Monte-Carlo计算,发现2粒子、3粒子和4粒子有相近的粒子交换率,并发现较高阶过程也有重要的贡献。

### 研究前景

新型的大功率稀释致冷机,可在10mK温度条件下提供几个 $\mu W$ 的致冷功率。如需进一步致冷,它还可提供4mK或更低的起始温度。这样,自旋有序固体 $He^3$ 的研究就变得更加方便了。早先用压缩致冷,在自旋有序温度以下时仅可维持几小时。在AT&T Bell小组的NMR实验中,可维持约两天。而用新的装置可以生长固体 $He^3$ 的单晶,在 $T_N$ 以下维持几个月。新装置的核去磁致冷级由60 mol的一大束铜线构成,NMR磁场可达6T。把铜束预冷到6mK

物理

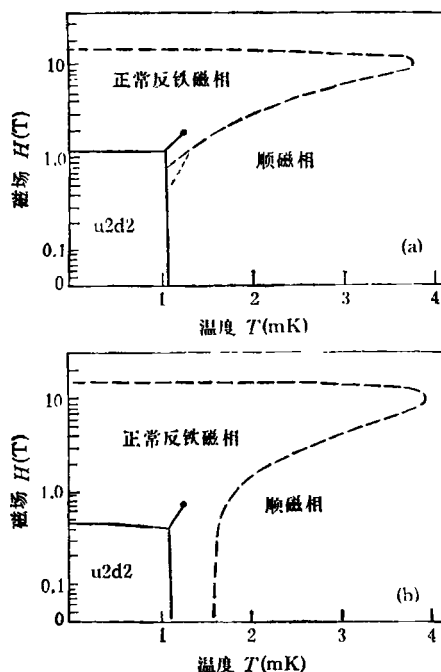


图6 根据多重交换模型按经典平均场计算的相图

(a) 仅用3自旋和4自旋交换; (b) 附加了两自旋交换

(大约要几天)时,其核热容为150J/K,注意,典型的漏热是几个nW。采用这种新装置,使我们有足够的时间去制作和研究高质量的样品。实验中还有一些重要的问题尚待解决。在 $T_N$ 附近,固体中平衡时间非常长,而现在采用大功率的致冷机,使我们有足够的时间来等待。晶体质量还有可疑之处,因为在极低温下,晶体的生长通常是由缺陷(如螺位错)来维持。至今还没有人试图在没有液体的情况下把固体冷到 $T_N$ 以下。磁有序相的研究最好用大块样品,而通常是在多孔热交换器中进行 $He^3$ 实验,应变和密度的不均匀会使结果变得可疑。

在今后几年中,输运性质的研究将是重要的。交换过程强烈地依赖于摩尔体积,这会导至自旋有序系统和声波间的强耦合。固体 $He^3$ 的低温热导应主要是磁子热导。已有一些证据表明热导确实很高。在这个系统中,平均自旋波速度仅为8cm/s,可能观察到磁子第二声。NMR实验将继续给出让人激动的新结果。

特别有意思的是有序相界面的性质,例如可通过畴壁的传热来研究u2d2相中自旋波在

畴壁上的反射。超流和不同的固态有序相间边界热阻特别低(这本身就很有趣),这可能有助于加深人们对极低温下量子固体-液体相界面共性的了解。

大块固态  $\text{He}^3$  在临界现象研究中不会有什么作用。因为相变是一级的,而且接近相变处热平衡时间过长。研究多孔热交换器中的样品,可克服平衡时间长的缺点,但会导致密度不均匀和应变场的出现。

可以期望通过  $\text{He}^3$  磁现象的研究搞清楚量子固体中原子在晶格中的运动规律。在固体  $\text{He}^4$  中也许有类似的运动,但无法用自旋的上下来直接标记原子。有人提出过,频繁的原子交换可能导致超流固体的出现,对这一点,  $\text{He}^3$  的研究也许会给我们提供一些线索。在接近熔解曲线处,对固体中原子交换的知识也许会使

我们对量子固化转变及强相互作用的费米液体的性质有更好的了解。这就是说,  $\text{He}^3$  实际上提供了一个简单的,也许和重电子系统有关的模型。在密度最低的固体中已有一些行为反常的证据。

$\text{He}^3$  的其它相,可能也是很有趣的量子磁性系统。高密度的六方密排相中,3自旋交换应占优势,呈铁磁性。在固体衬底上的  $\text{He}^3$  膜,与蒸气或与液体相接触,是二维磁性系统。同样,由于各向异性相互作用很小(和各向同性交换作用相比),所以这是一个近理想的磁性系统。看来,液体  $\text{He}^3$  和衬底之间的热传递也主要决定于膜的磁性,是它使界面热阻减低到反常小的数值。

(阎守胜根据 *Physics Today* 1987 年第 2 期第 35 至 41 页编译)

(上接第 234 页)

环境下出现的信息计算、传输和过程控制等问题。英国的伦敦大学、南安普敦大学、中央电气实验室、标准电讯公司,西德的夫郎霍菲物理测量技术研究所、汉堡-哈堡大学、西门子公司、德律风根公司,法国的汤姆孙-CSF 公司,意大利的无线电研究所和苏联的 20 多个单位都在积极进行研究和开发工作。

1983 年在伦敦召开了国际第一届光纤传感器会议。会上论文的内容涉及温度、液面、压力、速度、加速度、位移、振动、水声、流量、电压、电流、电场、磁场、核辐射等方面的光纤传感器。目前光纤温度传感器已有几十种类型,新的原理及其应用还在不断涌现,性能指标也在大幅度提高。当然从总的来说,光纤温度传感器仍处于理论研究和实验研制阶段,开发使用工作还刚开始起步,但可以肯定,它的应用前景是很广阔的。

综上所述,我们可以看到,在众多的温度传感器中,辐射式光纤温度传感器和半导体光纤温度传感器具有结构简单、性能可靠、能充分发挥现有半导体器件和半导体感温材料以及光纤传输技术的作用等优点,能较快地研制成功,并

能迅速推广到国民经济各部门使用,容易商品化,因此它们是当前开发研究的重点。干涉型温度传感器具有精度高、灵敏度好等优点,因而有着较大的发展前景,宜作为下一步研究开发的对象。

- [1] A. C. Van Hell, *Nature*, **39** (1954) 173.
- [2] C. M. Davis, *Proc. SPIE. Int. Soc. Opt. Eng (U. S. A.)*, **412** (1983), 2.
- [3] M. Gottlib, *Appl. Opt.*, **20** (1981), 3867.
- [4] N. Lagakos, *Appl. Opt.*, **20** (1981), 2305.
- [5] R. Hughes, *Appl. Opt.*, **19** (1980), 1477.
- [6] L. R. Donalds, *Electron. Lett.*, **18** (1982), 327.
- [7] M. Iman, *Opt. Lett.*, **5** (1980), 418.
- [8] T. Yoshion, *IEEE. J. Quan. Electron.*, **QE-18** (1982), 1624.
- [9] B. D. Evans, *SPIE*, **77** (1970), 88.
- [10] B. D. Evans, *IEEE. Trans. Nucl. Sci.*, **Na-2** (1978), 1619.
- [11] A. Dandridge, *Electron. Lett.*, **17** (1981), 523.
- [12] M. Gottlib, *Appl. Opt.*, **20** (1981), 3408.
- [13] W. Eickhoff, *Opt. Lett.*, **6** (1981), 204.
- [14] K. Kyuma, *IEEE. J. Quan. Elect.*, **QE-18** (1981), 676.
- [15] T. H. Windhom, *IEEE.*, **BME-16** (1979), 148.
- [16] Zeiss-Stiftung (英国专利), 类号: S03, S05, No. 2113-837-A.
- [17] T. Taniuchi, *Nati. Tech. Rep. (Japan)*, **29**(1983), 387.
- [18] J. P. Dakin, *Proc. SPIE. Int. Soc. Opt. Eng (U. S. A.)*, **369** (1983), 429.