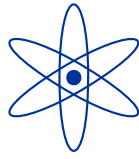
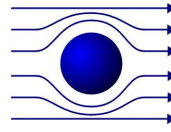




Technische
Universität
München



Physik-
Department



Walther-Meißner-
Institut für
Tiefemperaturphysik



Bayerische
Akademie der
Wissenschaften

Kernspinresonanzmessungen
an festem ^3He
bei ultratiefen Temperaturen

Diplomarbeit
von
Frank Deppe

Betreuer: PD Dr. Erwin A. Schubert
München, 5. Februar 2002

Dank

Ich bedanke mich für die große Unterstützung durch die vielen Leute, ohne die diese Arbeit nicht möglich gewesen wäre.

Insbesondere möchte ich meinen Betreuer PD Dr. Erwin A. Schubert und meine Kollegin Carmen Millán Chacartegui hervorheben, die mir immer hilfsbereit mit Rat und Tat zur Seite standen und sich nicht mal durch Wochenenden und Feiertage abschrecken ließen. Aus den Gesprächen und Diskussionen mit ihnen habe ich sehr viel lernen können.

Bei Dr. Kurt Uhlig bedanke ich mich dafür, dass er mir einen wichtigen Teil meiner Messzelle, den kapazitiven Drucksensor, fertig zusammengebaut und funktionierend zur Verfügung gestellt hat.

Dem technischen Personal des Walther-Meißner-Instituts danke ich dafür, dass sie mir in kritischen Situationen während der Experimente meist sehr schnell und unbürokratisch geholfen haben.

Großer Dank gebührt auch meinen Eltern, auf deren Unterstützung ich mich immer verlassen konnte.

Bei meinen Nicht-Physiker-Freunden möchte ich mich entschuldigen, sie gelegentlich mit Erzählungen über meine Arbeit sehr gelangweilt zu haben.

Inhaltsverzeichnis

1	Zusammenfassung	8
2	Einführung	11
2.1	Motivation	11
2.2	Ziele dieser Arbeit	15
3	Theorie	17
3.1	Magnetische Struktur von ^3He	17
3.1.1	Grundlegende Eigenschaften	17
3.1.2	Nächster-Nachbar-Heisenbergmodell für ^3He	19
3.1.3	Mehrteilchenaustauschwechselwirkung	21
3.2	Gepulste NMR	23
3.2.1	Prinzip der gepulsten NMR	23
3.2.2	Gepulste NMR an festem ^3He	26
3.3	Adiabatische Kernentmagnetisierung	28
4	Experimenteller Aufbau	31
4.1	Gesamtaufbau	31
4.2	Kühlsystem	34
4.3	NMR-Anordnung	34
4.4	^3He -Gashandlingssystem	38
4.5	^3He -Zelle	40
5	Durchführung der Experimente	47
5.1	Vorbereitung	47
5.2	Druckeichung	48
5.3	Einstellen des Zelldrucks	50
5.4	NMR-Messungen	51

6 Ergebnisse und Diskussion	54
6.1 Überblick	54
6.2 Umeichpunkte in den Magnetisierungskurven	55
6.3 Thermometrie der Kernstufe	56
6.4 Wärmeleck auf die Kernstufe	59
6.5 Magnetisierung des festen ^3He	62
7 Resumée und Ausblick	70
A Rechnerunterstützung	72
A.1 Verwendete Computersysteme	72
A.2 Messprogramme	73
A.3 Auswertungsprogramme	73

Abbildungsverzeichnis

2.1	Magnetisches Phasendiagramm von festem ^3He	13
2.2	Spinstruktur von Hoch- und Niederfeldphase	14
3.1	Entropie von festem und flüssigem ^3He	18
3.2	Mehrteilchenaustauschprozesse in bcc ^3He	23
3.3	Theoretische Phasendiagramme für ^3He	24
3.4	NMR-Spektrum eines ^3He -Einkristalls mit drei Domänen	27
3.5	Kernspinentropie von Kupfer in verschiedenen Magnetfeldern	28
3.6	Kernspinentropie von PrNi_5 in verschiedenen Magnetfeldern	30
4.1	Schematische Darstellung des Gesamtaufbaus	32
4.2	Thermische Abfangung der ^3He -Kapillaren	33
4.3	Mischkammer und Kernstufe der „Bayerischen Millimühle 2“	35
4.4	Foto der PrNi_5 -Kernstufe der „Bayerischen Millimühle 2“	36
4.5	Schematische Darstellung der Apparatur für gepulste NMR	37
4.6	Schema der Cu-NMR-Spule für die Bestimmung der Kernstufentemperatur	38
4.7	Plan des ^3He -Gashandlingssystems	39
4.8	Schematische Darstellung der ^3He -Messzelle	41
4.9	Foto der ^3He -Messzelle	42
4.10	Typische Temperaturprofile beim Vorsintern des Ag-Pulvers	43
4.11	Schematische Darstellung der thermischen Ankopplung der Zelle an die Kernstufe	46
5.1	Eichkurve für den kapazitiven Drucksensor	49
5.2	Theoretische und gemessene Kondensationskurve von ^3He	51
6.1	Cu-NMR-Spektrum bei $T = 0.7$ mK	56
6.2	Aufwärmkurve der PrNi_5 -Kernstufe	57

6.3	Gemessene spezifische Wärme des PrNi ₅ der Kernstufe	61
6.4	Spezifische Wärme von PrNi ₅	61
6.5	³ He-NMR-Spektrum bei $T = 0.7$ mK	62
6.6	Magnetisierung, Halbwertsbreite und Resonanzfrequenz von ³ He in Abhängigkeit von der Zeit	64
6.7	Magnetisierung, Halbwertsbreite und Resonanzfrequenz von ³ He in Abhängigkeit von der Temperatur der Kernstufe	65
6.8	Inverse Suszeptibilität von ³ He gegen Kernstufentemperatur	69

Tabellenverzeichnis

3.1	Permutationen für den Mehrspinaustauschhamiltonoperator	22
4.1	Daten der thermischen Abfangungen der ^3He -Leitungen an den einzelnen Temperaturniveaus	33
4.2	Daten der ^3He -NMR-Spule und des Spulenkörpers	44
5.1	NMR-Daten einiger Isotope	52

Kapitel 1

Zusammenfassung

^3He ist ein chemisch inertes Edelgas mit einem einfachen Spin-1/2-Kern, d.h. es gibt kein Quadrupolmoment. Die Kristallgitterstruktur ist kubisch raumzentriert (bcc). Es besitzt bei 315 mK ein Minimum in der Schmelzdruckkurve und wird selbst bei $T = 0$ erst unter einem Druck von mindestens 34.40 bar fest.

Aufgrund der Dipol-Dipol-Wechselwirkung würde man in festem ^3He eine magnetische Kernordnung bei nK-Temperaturen erwarten. Wegen der hohen Nullpunktsenergie dominieren jedoch bei tiefen Temperaturen Austausch- und Zeemanenergie. Deshalb bilden sich bereits bei einer Temperatur von $T \approx 1$ mK zwei kernspingegordnete Phasen. Dieser Temperaturbereich ist mittels der adiabatischen Kernentmagnetisierung zugänglich. Da zusätzlich im ^3He die verschiedenen Energiebereiche weit voneinander separiert sind, eignet es sich ausgezeichnet zum Studium von kernmagnetischen Phasen im Festkörper.

Nach ersten Messungen in den sechziger Jahren betrachtete man festes ^3He als den „einfachsten Antiferromagneten der Welt“, beschrieben durch einen Nächste-Nachbarn-Heisenberg-Hamiltonoperator, der nur eine Paarwechselwirkung zwischen den Spins zuließ. Anfang der siebziger Jahre erlaubte das Verfahren der adiabatischen Kernentmagnetisierung, den postulierten Phasenübergang zweiter Ordnung vom Kernparamagnetismus zum Antiferromagnetismus direkt zu vermessen. Dabei fand man überraschende Abweichungen von den Vorhersagen des Nächste-Nachbarn-Heisenbergmodells. Es stellte sich heraus, dass zwei verschiedene antiferromagnetische Phasen existieren: eine Niederfeldphase, in der die Spins von je zwei aufeinanderfolgenden ferromagnetischen Ebenen antiparallel zu denen der nächsten beiden Ebenen stehen (U2D2-Struktur), und eine Hochfeldphase in Magnetfeldern von $B > 0.44$ T. Sie hat eine „verkippt antiferromagnetische“ Struktur (CNAF), d.h. die

Spins des einen ferromagnetischen Untergitters bilden mit denen des Anderen einen Winkel kleiner als 180° . Die Néel-Temperatur bei $B = 0$ ist mit $T_N = 0.93$ mK nur etwa halb so groß wie vorhergesagt, außerdem ist der Übergang von erster Ordnung.

Das gemessene Phasendiagramm kann theoretisch besser erklärt werden, wenn man mehr Nachbarn und Mehrkörperwechselwirkungen in den Hamiltonoperator mit einbezieht. Trotz aufwendiger Rechnungen liefern Theorie und Experiment jedoch noch immer keine übereinstimmenden Ergebnisse. Insbesondere können die experimentell ermittelten Werte nicht durch ab-initio-Rechnungen nachvollzogen werden.

Ziel der vorliegenden Arbeit war es, ^3He in einem Silbersinter in der Nähe des Schmelzdrucks zu verfestigen und unter die Néel-Temperatur zu kühlen. Zunächst wurde die Messzelle hergestellt, in das zweistufige Ultratieftemperaturkühlsystem ($^3\text{He}/^4\text{He}$ -Mischkühler und PrNi_5 -Kernstufe) eingebaut und an ein Gashandlingssystem angeschlossen. Das Erreichen der Niederfeldphase sollte dann durch Messung der Magnetisierung mit gepulster NMR nachgewiesen werden. Anhand des NMR-Signals sollte insbesondere überprüft werden, ob ein Ein- oder ein Polykristall vorliegt.

In der paramagnetischen Phase ergab die Fouriertransformierte des NMR-Resonanzpulses („free induction decay“, FID) den erwarteten Lorentzpeak bei der Larmorfrequenz. Bei Temperaturen unterhalb von T_N waren zwei starke Einbrüche in der Magnetisierung zu sehen. Von ihnen lässt sich einer als (zumindest partieller) fest-flüssig-Übergang aufgrund des zu geringen Drucks bei der Kondensation deuten. Dafür sprechen die Abnahme der Halbwertsbreite („motional narrowing“) und der starke Rückgang der Polarisation auf ca. 2% des Ausgangswerts.

Weiterhin wurden deutliche Anzeichen dafür gefunden, dass der schwächere Einbruch den Übergang in die Niederfeldphase darstellt. Die augenfälligste Bestätigungen hierfür ist die Tatsache, dass er gerade bei der erwarteten Néel-Temperatur $T_N = 0.9$ mK stattfindet. Eine Linienaufspaltung konnte dabei jedoch nicht beobachtet werden. Dafür könnte entweder die spezielle Kristallorientierung eines Einkristalls oder das Vorliegen eines Polykristalls verantwortlich sein. Im ersten Fall wäre die Aufspaltung sehr gering gegenüber der Halbwertsbreite des paramagnetischen Peaks und damit nicht beobachtbar. Im zweiten Fall wäre das spektrale Gewicht der aufgespaltenen Linien so verteilt, dass es nicht vom Untergrund unterscheidbar ist. Die deutlich erkennbare Verschiebung der Resonanzfrequenz und die leichte Verbreiterung des Peaks stützen allerdings beide Hypothesen. Um die Frage nach dem Einkristall endgültig zu klären, bedarf es also noch weiterer Experimente.

Eine Abschätzung der Néel-Temperatur aus der Extrapolation des Curie-Weiß-Verhaltens in der paramagnetischen Phase ergibt eine deutlich antiferromagnetische Tendenz mit $\Theta \approx -1.2 \text{ mK}$ und damit $T_N \approx 0.6 \text{ mK}$. Die Diskrepanz zum erwarteten Wert liegt im Bereich der Unsicherheit der Daten, die dieser Abschätzung zugrunde liegen.

Kapitel 2

Einführung

2.1 Motivation

Seit Beginn der Untersuchungen an festem ^3He bei tiefen Temperaturen in den fünfziger Jahren fand man einige ungewöhnliche, hochinteressante Eigenschaften. So handelt es sich um einen Quantenfestkörper mit einer außergewöhnlich großen Nullpunktsenergie und damit einer hohen Platzwechselrate von $10^6/s$ für jedes Atom. Weiterhin wird ^3He auch bei $T = 0$ erst unter einem Druck von 34.40 bar fest und besitzt ein Minimum in der Schmelzdruckkurve bei 315 mK und $P_{\text{m,min}} = 29.32$ bar. Dies ist eine Folge davon, dass bei tiefen Temperaturen die Entropie von der des Spinsystems bestimmt wird. Letztere ist im Festkörper $R \ln 2$ bis zum Einsetzen einer Spinordnung bei $T \approx 1$ mK, in der Flüssigkeit jedoch durch die Quantenstatistik gegeben. Daher ist die Entropie des Festkörpers für $T < T_{\text{min}}$ größer als die der Flüssigkeit.

Auch bezüglich der kernmagnetischen Eigenschaften von festem ^3He zeigten die Experimente (v.a. thermodynamische Messungen und NMR) unerwartete Ergebnisse, für die bis heute noch keine vollständig überzeugende Erklärung gegeben werden konnte. Es stellte sich heraus, dass bei tiefen Temperaturen in festem ^3He wegen der hohen Nullpunktsenergie die Austauschwechselwirkung zusammen mit der Zeeman-Energie gegenüber der Dipol-Dipol-Wechselwirkung dominiert. Deswegen kann man kernspingeordnete Phasen im Nullfeld nicht wie 1950 von Pomeranchuk [1] vorhergesagt bei Temperaturen unter 10^{-7} K, sondern bereits im durchaus zugänglichen Temperaturbereich von ca. 1 mK beobachten. Die Energiebereiche elektronischer Wechselwirkungen sind wegen der Struktur des ^3He -Atoms (chemisch inertes Edelgas, Nichtleiter mit 24 eV Bandlücke) weit von dem der Kernordnung separiert.

Daher eignet sich ^3He besonders gut zur Untersuchung von kernmagnetischen Phasen im Festkörper.

Aufgrund der ersten Experimente bei $B = 0$ glaubte man in den frühen 70er Jahren, festes ^3He als reinen Nächste-Nachbarn-Heisenberg-Antiferromagneten beschreiben zu können (Panczyk und Adams 1969 [2], Kirk et al. 1969 [3], Castles und Adams 1973 [4]). Spätere Experimente widersprachen jedoch dieser Sichtweise (Kirk und Adams 1971 [5], Adams et al. 1980 [6]) und legten die Existenz von zwei verschiedenen kernmagnetischen Phasen nahe: einer Niederfeldphase in Magnetfeldern $B < 0.44$ T und einer Hochfeldphase in größeren Feldern (Abb. 2.1).

Die bisherigen Erkenntnisse über die Struktur von Hoch- und Niederfeldphase stammen im Wesentlichen aus NMR-Experimenten (Osheroff et al. 1980 [7], Feng et al. 1991 [8], Sasaki et al. 1991 [9], Kusumoto et al. 1985 [10]). Danach existieren in der Niederfeldphase jeweils ferromagnetische Ebenen, deren Spins senkrecht zu einer der Achsen des bcc-Kristallgitters orientiert sind. Von diesen Ebenen haben immer zwei aufeinanderfolgende die Spinrichtung up, die nächsten zwei down, die nächsten zwei wieder up usw. Man bezeichnet dies als U2D2-Struktur (Abb. 2.2).

Die Hochfeldphase hingegen ist wahrscheinlich eine CNAF („canted normal antiferromagnetic“) Phase, d.h. sie besitzt zwei kubische antiferromagnetische Untergitter, deren Spins jedoch nicht genau entgegengesetzt stehen, sondern einen Winkel $< 180^\circ$ miteinander bilden (Abb. 2.2). Schubert et al. [11] machten 1980 erste thermodynamische Messungen in dieser Phase.

Eine zweifelsfreie Klärung der Struktur der magnetischen Phasen ist allerdings nur mit Neutronenstreuung möglich. Dieses Experiment soll derzeit im Rahmen eines EU-Projekts am Hahn-Meitner-Institut in Berlin realisiert werden. Die vorliegende Arbeit wurde im Rahmen des ^3He -Projekts am Walther-Meißner-Institut in Garching angefertigt und ist ebenfalls Teil des obengenannten EU-Projekts. In Garching sollen Magnetisierungsmessungen an festem ^3He bei ultratiefen Temperaturen durchgeführt werden. Dabei wird zunächst mit gepulsten NMR-Messungen begonnen, um den experimentellen Umgang mit ^3He bei ultratiefen Temperaturen und in speziellen Zellen zu erlernen. Die Idee ist nun, im Weiteren Magnetisierungsmethoden zu verwenden, die nur selten oder noch gar nicht durchgeführt worden sind. Mit einem SQUID (superconducting quantum interference device) kann in geringen Magnetfeldern die Magnetisierung sehr genau bestimmt werden. Ein Torquemeter ist zur Bestimmung von einer Anisotropie der Magnetisierung geeignet. Weil der Betrag des Torques $\tau = |\boldsymbol{\mu} \times \mathbf{B}| \propto B^2$ ist, wird die Empfindlichkeit der Torque-

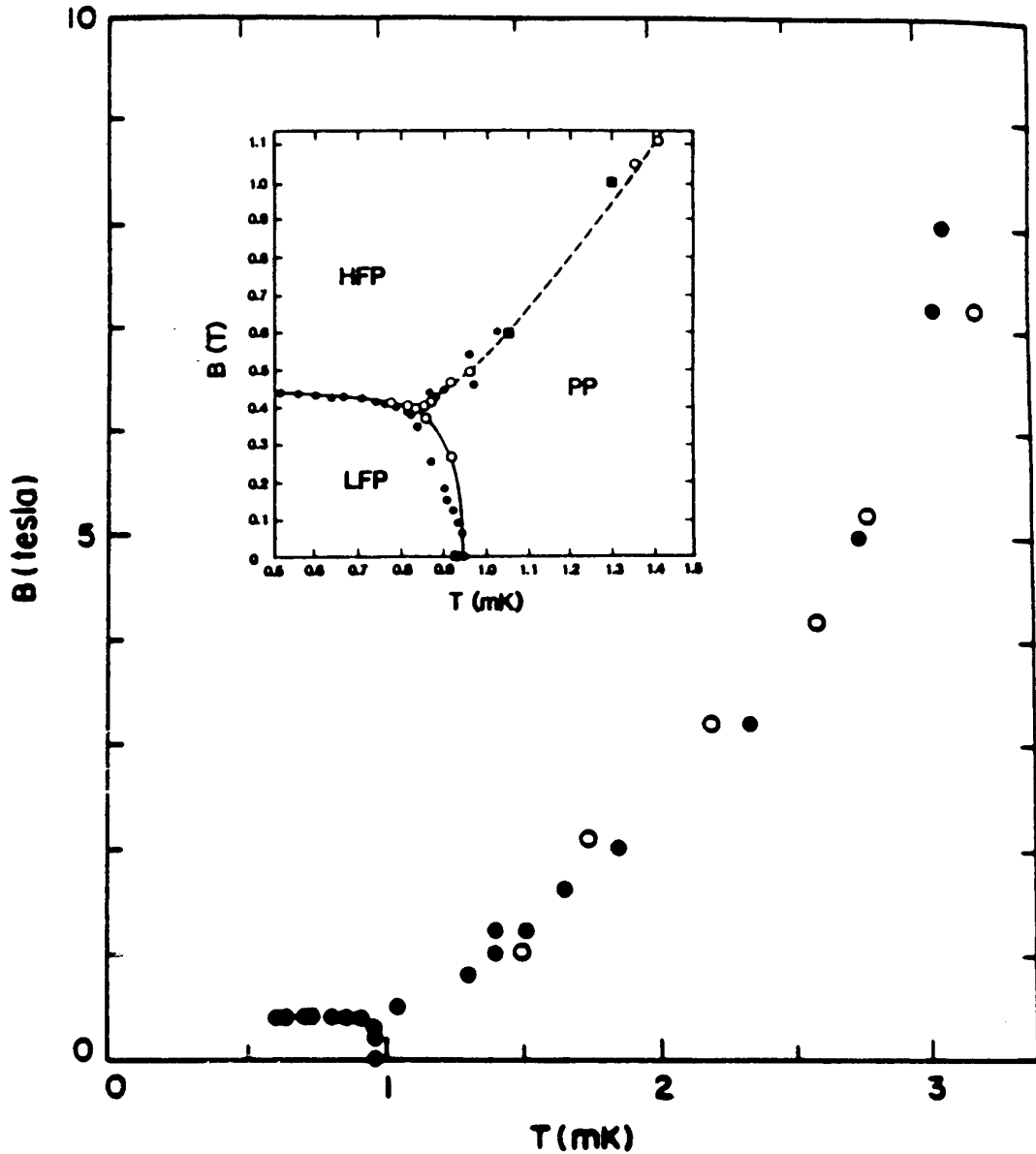


Abbildung 2.1: Magnetisches Phasendiagramm von festem ^3He (aus Osheroff [12]). Für $T \lesssim 1$ mK erkennt man zwei kernspingeordnete Phasen: eine Niederfeldphase (LFP) in Feldern $B \lesssim 0.44$ T und eine Hochfeldphase (HFP) in höheren Feldern. Oberhalb von 1 mK liegt eine kernparamagnetische Phase vor.

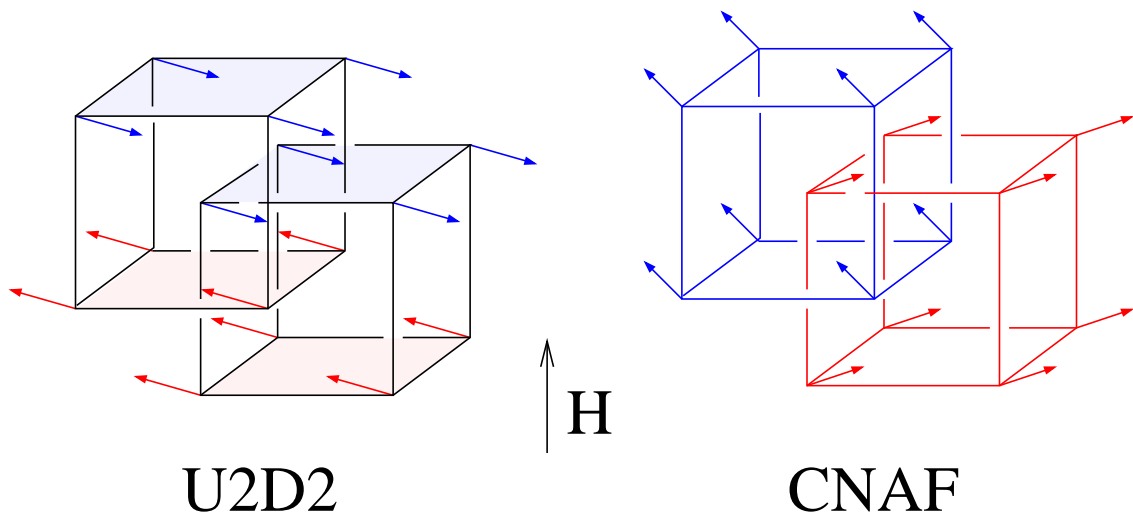


Abbildung 2.2: Struktur der Niederfeldphase (U2D2, d.h. je zwei Spin-up-Ebenen folgen auf zwei Spin-down-Ebenen. Da die Spins in den Ebenen senkrecht zum angelegten Feld ausgerichtet sind, wäre die Bezeichnung „links-2-rechts-2“ eigentlich zutreffender). Die Hochfeldphase (CNAF) besitzt antiferromagnetische Untergitter, deren Spinrichtung gegeneinander verkippt ist.

messung in hohen Feldern besonders groß. Allerdings könnte wegen der kubischen Gitterstruktur im ^3He keine messbare magnetische Anisotropie auftreten oder der Torque könnte sich nicht von den Spins auf das Kristallgitter übertragen. In diesem Fall kann die Magnetisierung dennoch mit einer Faradaywaage bestimmt werden. Leider ist die Faraday-Methode jedoch weniger empfindlich als ein Torquemeter.

Die aus den oben beschriebenen Messungen gewonnenen Erfahrungen und Erkenntnisse können wiederum einen Beitrag zum Erfolg des Neutronenstreuungsexperiments in Berlin liefern. So ist eine wichtige Voraussetzung für die Gewinnung von Strukturinformationen aus den Magnetisierungs- oder Streuexperimenten die Messung an einem Einkristall. Da zum Erreichen der gewünschten Temperatur das feste ^3He wegen seiner schlechten Wärmeleitfähigkeit und des hohen Kapitza-Widerstands an einer großen Oberfläche (Sinter!) gekühlt werden muss, ist die Erforschung von Zuchtbedingungen für einen ^3He -Einkristall im Sinter eines der Nahziele des Gar-chinger Projekts.

2.2 Ziele dieser Arbeit

Zur Klärung des Magnetismus in festem ^3He ist die Kenntnis von Struktur und Eigenschaften der kernspingeordneten Phasen von entscheidender Bedeutung. Informationen darüber kann man u.a. aus Magnetisierungsmessungen gewinnen (Osheroff [12]). Deshalb soll im Verlauf des Garching-Projekts insbesondere die Abhängigkeit der Magnetisierung des ^3He von anderen thermodynamischen Größen wie Druck, Temperatur, äußerem Feld oder molarem Volumen gemessen werden.

Bevor solche längerfristigen Pläne realisiert werden können, ist es wichtig, in einem ersten Schritt grundlegende Erfahrungen im experimentellen Umgang mit ^3He bei ultratiefen Temperaturen zu sammeln. Aus dieser Überlegung leiten sich die konkreten Aufgaben und Ziele dieser Arbeit ab:

- Zunächst sollte eine Zelle konstruiert werden, in der das ^3He in einem metallischen Sinter auf eine Temperatur unterhalb der Néel-Temperatur $T_N = 0.9\text{ mK}$ gekühlt wird. In diese Zelle sollen eine NMR-Spule und ein kapazitiver Drucksensor integriert sein. Außerdem muss die Zelle einem Druck von bis zu 60 bar standhalten.
- Diese Zelle sollte in ein (bereits existierendes) Ultratiefemperaturkühlsystem eingebaut und mit einem Gashandlingssystem und einer NMR-Apparatur verbunden werden.
- Anschließend mussten die Turbo-Pascal-Messprogramme geschrieben werden. Insbesondere die NMR-Messung soll wegen ihrer langen Dauer (mehrere Tage/Wochen lang ein Messpunkt alle 2 – 4 h) durch die Programme soweit wie möglich automatisch durchgeführt werden.
- Schließlich sollten mittels Kernspinresonanz Magnetisierungsmessungen durchgeführt und damit nach Möglichkeit das Erreichen der sogenannten Niederfeld- oder U2D2-Phase nachgewiesen werden.

Natürlich müssen während des Experiments auftretende Probleme erkannt und möglichst vollständig bewältigt werden. Diese Probleme werden zusätzlich dadurch verschlimmert, dass sowohl langwierige und anspruchsvolle Aufbauarbeit zu leisten ist, als auch dadurch, dass die Zeitdauer einer Messreihe wegen des aufwendigen Kühlprozesses etwa 3 – 4 Wochen beträgt. Bei den besonders am Anfang unvermeidlichen Fehlern ist das Erzielen eines einzigen brauchbaren Datensatzes und dessen konsistente Interpretation schon als großer Erfolg zu werten.

Diese Arbeit bildet nur den Grundstein für das Garching ^3He -Projekt, da sie auf ein Jahr begrenzt ist und das Erreichen der angestrebten Ziele des Projekts weitere langwierige Experimente erfordert. Im nächsten Schritt soll aus der Fortsetzung der NMR-Messungen Aufschluss über die Zuchtbedingungen von ^3He -Einkristallen im Sinter gewonnen werden. Dabei ist interessant, ob sich aus den Experimenten auch Aussagen über die Kristallorientierung machen lassen und ob es möglich ist, das Kristallwachstum gezielt zu beeinflussen. Ausgehend von einem ^3He -Einkristall im Sinter sollte es dann möglich sein, von den Vorteilen anderer Magnetisierungsmethoden zu profitieren (siehe auch Abschn. 2.1).

Kapitel 3

Theorie

Als Grundlage für die Darstellung und Interpretation der Messergebnisse (Kap. 6) wird in diesem Kapitel neben den magnetischen Eigenschaften von festem ^3He auch das Prinzip der NMR und seine Anwendung auf festes ^3He beschrieben. Aus demselben Grund wird die Kühlmethode der adiabatischen Kernentmagnetisierung von PrNi_5 kurz vorgestellt. Wesentliche Anregungen für Gestaltung dieses Kapitels sind den Referenzen [12, 13, 14, 15] entnommen.

3.1 Magnetische Struktur von ^3He

3.1.1 Grundlegende Eigenschaften

Festes ^3He hat einen Spin-1/2-Kern und ein gyromagnetisches Verhältnis von $\gamma/2\pi = 32.43\text{ MHz/T} = 3.243\text{ MHz/kG}$. Daraus resultiert ein verhältnismäßig großes kernmagnetisches Moment von $\mu = 1.07 \cdot 10^{-26}\text{ Am}^2 = 1.07 \cdot 10^{-23}\text{ emu}$.

Die Entropie des Festkörpers entspricht bei tiefen Temperaturen der Kernspinentropie. Wegen $I = 1/2$ beträgt diese im vollständig entarteten Zustand

$$S_{\text{fest}} = R \ln 2. \quad (3.1)$$

Erst bei Temperaturen, bei denen die Kernspins miteinander wechselwirken und schließlich spontan ordnen, fällt die Entropie relativ steil auf Null ab, wie es der dritte Hauptsatz der Thermodynamik fordert.

In der Flüssigkeit sind die ^3He -Atome ununterscheidbar. Da es sich um Fermionen handelt, gilt das Pauli-Prinzip und die Fermi-Dirac-Statistik muss angewandt

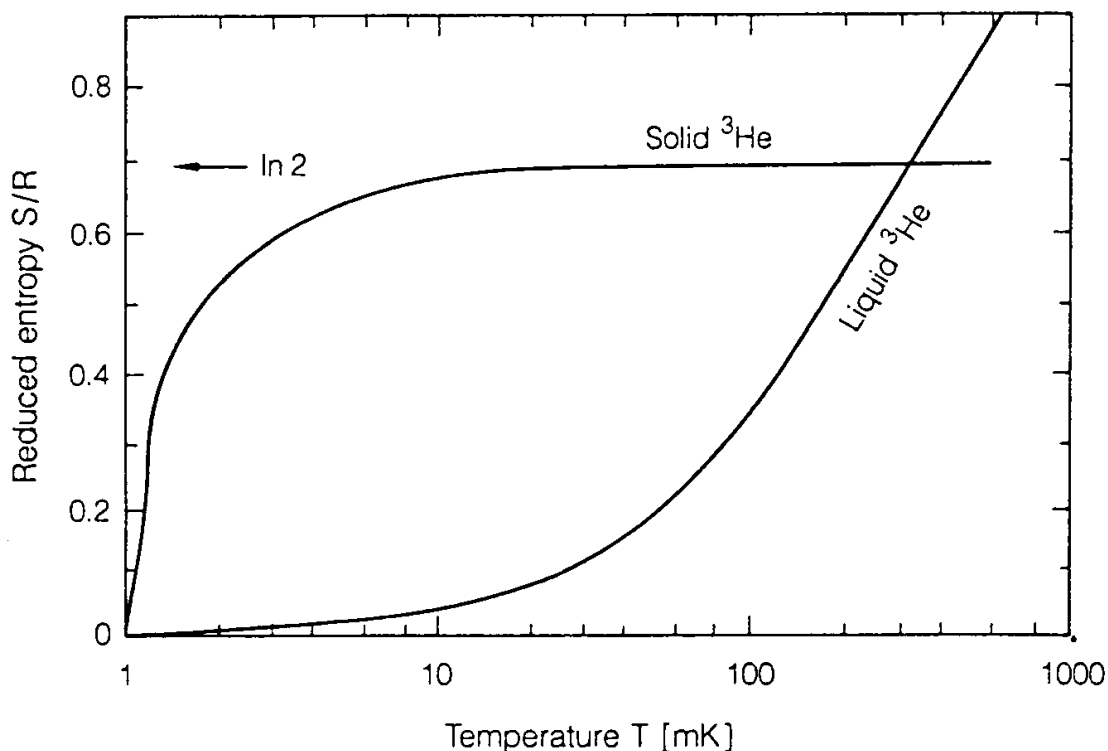


Abbildung 3.1: Entropie von festem und flüssigem ^3He . Der Pfeil bezeichnet die Entropie im vollständig entarteten Zustand. Am Kreuzungspunkt der beiden Kurven hat die Schmelzdruckkurve ein Minimum. (Aus [15]).

werden. Analog zu den Leitungselektronen eines Metalls findet man nun

$$S_{\text{flüssig}} = \frac{\pi^2 R T}{2 T_F} = 4.56 RT. \quad (3.2)$$

Dabei ist R die Gaskonstante und T_F die Fermitemperatur. Die Entropie von festem und flüssigem ^3He unterhalb von 1K ist in Abb. 3.1 dargestellt. Am Kreuzungspunkt der beiden Kurven hat die Schmelzdruckkurve ein Minimum. Man findet $T_{\min} = 315 \text{ mK}$ und $P_{\text{m,min}} = 29.32 \text{ bar}$. Für $T < T_{\min}$ ist also die Entropie des Festkörpers größer als die der Flüssigkeit, d.h. beim Verflüssigen wird Schmelzwärme frei.

Der Verlauf der Schmelzkurve ist in Abb. 5.2 zu sehen. Nach Unterschreitung von T_{\min} steigt der Schmelzdruck wieder bis auf $P_{\text{m,0K}} = 34.40 \text{ bar}$ (Kummer [16]) bei $T = 0$ an. Bei $T = 0$ beträgt das molare Volumen auf der Schmelzkurve $22.4 \text{ cm}^3/\text{mol}$ (Grilly [17]). Unterhalb von ca. 100 bar Druck ist die Kristallstruktur kubisch raumzentriert (bcc).

3.1.2 Nächster-Nachbar-Heisenbergmodell für ^3He

Anfang der siebziger Jahre galt ^3He als der „einfachste Magnet der Welt“. Die Beschreibung erfolgte durch ein simples Nächster-Nachbar-Heisenbergmodell der Austauschwechselwirkung für einen Antiferromagneten.

Der Hamiltonoperator H enthält bei $T \approx 1$ mK nur noch zwei Beiträge, nämlich den Zeemanterm H_z und den Austauschterm H_{ex} zwischen den Spins. Wegen des Debyeschen T^3 -Gesetzes spielen die Phononen keine Rolle. Die Dipol-Dipol-Wechselwirkung gewinnt erst im nK-Bereich an Bedeutung. Es gilt

$$H = H_z + H_{\text{ex}}. \quad (3.3)$$

Der Vielteilchenhamiltonoperator ist nicht exakt lösbar. Um wenigstens eine Näherungslösung zu erhalten, werden bestimmte modellhafte Annahmen über die Austauschwechselwirkung gemacht:

- Der Spin ist ein halbklassischer Vektor, d.h. eine im Grunde klassische Vektorgröße mit Quantisierungsregeln.
- Alle Spins sind unterscheidbar, gleich groß und an Gitterpunkten lokalisiert.
- Es handelt sich um dreidimensionale Spins, d.h. die Spins sind frei im Raum drehbar.
- Die Wechselwirkung W zwischen den Spins \mathbf{s}_i und \mathbf{s}_j ist beschränkt auf eine Paarwechselwirkung der Form

$$W = -J_{ij}(\mathbf{s}_i \cdot \mathbf{s}_j). \quad (3.4)$$

Die J_{ij} heißen Austauschintegrale und haben die Dimension einer Energie.

Der Austauschhamiltonoperator aus Gl. 3.3 wird nun zusammen mit Gl. 3.4 zu

$$H_{\text{ex}} = - \sum_{i,j} J_{ij}(\mathbf{s}_i \cdot \mathbf{s}_j). \quad (3.5)$$

Intuitiv einleuchtend ist die Näherung, dass weit entfernte Spins nur wenig zur Summe aus Gl. 3.5 beitragen. Im Extremfall berücksichtigt man nur den Einfluss der nächsten Nachbarn („n.n.“), der darüberhinaus noch für alle nächsten Nachbarn

gleich J gesetzt wird. Für das kubische ^3He ist insbesondere letztere Annahme sicher gerechtfertigt. Damit erhält man den n.n.-Hamiltonoperator

$$H_{\text{ex}} = -2J \sum_{i < j}^{\text{n.n.}} (\mathbf{s}_i \cdot \mathbf{s}_j). \quad (3.6)$$

In einem äußeren Feld \mathbf{B} muss man noch den Zeemanterm

$$H_z = - \sum_i \boldsymbol{\mu}_i \cdot \mathbf{B} = - \sum_i^{\text{n.n.}} \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{B}. \quad (3.7)$$

berücksichtigen. $\boldsymbol{\mu}_i$ ist das magnetische Moment des i -ten ^3He -Atoms, $\boldsymbol{\mu} \equiv \boldsymbol{\mu}_i$ wird analog zu J für alle nächsten Nachbarn gleich angenommen.

Mit dem bekannten Hamiltonoperator kann man theoretisch aus der Zustandssumme

$$Z = \text{Spur}(e^{-\frac{H}{k_B T}}) \quad (3.8)$$

die freie Energie $F = -k_B \ln Z$ und daraus alle anderen thermodynamische Größen berechnen. Das Ermitteln eines geschlossenen Ausdrucks für die Zustandssumme ist jedoch mit erheblichen mathematischen Schwierigkeiten verbunden. Im Temperaturbereich von 10 – 100 mK führt man deshalb eine „Hochtemperaturentwicklung“ ($T \gg J/k_B$, $T \gg \mu B/k_B$) durch und erhält

$$\begin{aligned} \text{Entropie} \quad S &= Nk_B \left(\ln 2 - \frac{1}{8}\epsilon_2\beta^2 + \dots \right) \\ \text{spezifische Wärme} \quad C_V &= Nk_B \left(\frac{1}{4}\epsilon_2\beta^2 + \dots \right) \\ \text{Suszeptibilität} \quad \chi &= \frac{N\mu^2}{V} \left(\beta + \frac{1}{2}\alpha_1\beta^2 + \dots \right) \\ \text{inv. Suszeptibilität} \quad \chi^{-1} &= \frac{k_B V}{N\mu^2} \left(T - \Theta + \frac{B}{T} + \dots \right) \\ \text{Druck} \quad P_V - P_0 &= Nk_B \left[\frac{\beta}{8} \frac{\partial \epsilon_2}{\partial V} + \dots + \left(\frac{\gamma h H_0 \beta}{2} \right)^2 \left(\frac{1}{2} \frac{\partial \Theta}{\partial V} + \dots \right) \right] \end{aligned} \quad (3.9)$$

Hierbei sind die Größen, nach denen entwickelt wird

$$\epsilon_2 = 12J^2, \quad \alpha_1 = 8J, \quad \Theta = 4J, \quad \beta = \frac{1}{k_B T}. \quad (3.10)$$

Die Ausdrücke für andere thermodynamische Größen können analog berechnet werden. Im n.n.-Heisenbergmodell erwartet man also nach Gl. 3.9 ein Curie-Weiß-Gesetz

$$\chi \propto \frac{1}{T - \Theta} \quad (3.11)$$

mit einem Phasenübergang zweiter Ordnung vom kernparamagnetischen in einen antiferromagnetischen Zustand. Baker et al. [18] schätzten 1967 die Néel-Temperatur auf 2 mK ab. Messungen von Druck, magnetischer Suszeptibilität und spezifischer Wärme (Panczyk und Adams 1969 [2], Kirk et al. 1969 [3], Castles und Adams 1973 [4]) oberhalb von 25 mK zeigten in der Tat das erwartete Verhalten, ^3He wurde folglich als Heisenberg-Antiferromagnet klassifiziert.

3.1.3 Mehrteilchenaustauschwechselwirkung

Ausführlichere Druckexperimente im Magnetfeld (Kirk und Adams 1971 [5]) ergaben jedoch, dass der Wert für Θ aus Gl. 3.9 bei Anlegen eines Magnetfelds nur etwa halb so groß war wie erwartet. Mittels der adiabatischen Kernentmagnetisierung wurde nun das magnetische Phasendiagramm (Abb. 2.1) bis zu Temperaturen unter 1 mK direkt gemessen. Neben der paramagnetischen Phase fand man eine sogenannte Hochfeldphase und eine sogenannte Niederfeldphase (siehe auch Abschn. 2.1), mit einer feldabhängigen Übergangstemperatur von $T_N \approx 1$ mK. Weiterhin stellte sich heraus, dass der Phasenübergang in die Niederfeldphase von erster Ordnung ist. Dies alles sind Hinweise darauf, dass das n.n.-Heisenbergmodell keine adäquate Beschreibung für den Magnetismus in festem ^3He darstellen kann.

Um die neuen Erkenntnisse theoretisch erklären zu können, musste man auch noch die zweitnächsten Nachbarn berücksichtigen und neben der Paarwechselwirkung einen Mehrkörperaustausch zulassen. Den Grund dafür kann man sich mit dem „Metro“-Modell von Roger et al. [19] klarmachen. In der überfüllten Pariser Metro können zwei Menschen nur dann die Plätze tauschen, wenn andere zyklisch mitwandern. Den Mehrspinaustauschhamiltonoperator kann man nach Roger et al. [19] bzw. Godfrin und Osheroff [20] schreiben als

$$H_{\text{ex}} = \sum^P J_P (-1)^P \hat{P}_P. \quad (3.12)$$

$$\begin{aligned}
N = 2: \quad & \hat{P}_{ij}^\sigma = \frac{1}{2} (1 + \hat{\sigma}_i \hat{\sigma}_j) \\
N = 3: \quad & \hat{P}_{ijk}^\sigma + [\hat{P}_{ijk}^\sigma]^{-1} = \frac{1}{2} (1 + \hat{\sigma}_i \hat{\sigma}_j + \hat{\sigma}_j \hat{\sigma}_k + \hat{\sigma}_k \hat{\sigma}_i) \\
N = 4: \quad & \hat{P}_{ijkl}^\sigma + [\hat{P}_{ijkl}^\sigma]^{-1} = \frac{1}{4} \left(1 + \sum_{\mu < \nu} \hat{\sigma}_\mu \hat{\sigma}_\nu + \hat{G}_{ijkl} \right) \\
& \hat{G}_{ijkl} = (\hat{\sigma}_i \hat{\sigma}_j) (\hat{\sigma}_k \hat{\sigma}_l) + (\hat{\sigma}_i \hat{\sigma}_l) (\hat{\sigma}_j \hat{\sigma}_k) - (\hat{\sigma}_i \hat{\sigma}_k) (\hat{\sigma}_j \hat{\sigma}_l)
\end{aligned}$$

Tabelle 3.1: Permutationen für den Mehrspinaustauschhamiltonoperator bis $N = 4$. Sie können durch Kombinationen von Paaraustauschoperatoren ausgedrückt werden (nach Roger et al. [19]).

Die Permutationen \hat{P} für den Austausch von N Spins erhält man aus den Spinoperatoren $\hat{\sigma}$. Sie sind bis $N = 4$ in Tab. 3.1 angegeben, in Abb. 3.2 werden die damit verbundenen Prozesse graphisch illustriert.

Die mathematische Behandlung des Hamiltonoperators ist sehr aufwendig. Im Prinzip berechnet man jedoch wieder die freie Energie aus der Zustandssumme und entwickelt diese in Reihen. Das Ergebnis von Roger et al. [19] für eine 2-Parameter- und eine 3-Parameter-Theorie bei Schmelzdruck ist in Abb. 3.3 zu sehen. Im 2-Parameter-Modell berücksichtigt man den Dreikörperringtausch und den planaren Vierkörperringtausch, im 3-Parameter-Modell nimmt man noch den Paartausch hinzu. Schon bei der Beschreibung durch das 2-Parameter-Modell finden sich viele Übereinstimmungen mit dem experimentell ermittelten Phasendiagramm (Abb. 2.1). Bei tiefen Temperaturen ergibt sich in niedrigen Feldern eine U2D2-Phase und in höheren Feldern eine CNAF-Phase. Die Ordnung der Phasenübergänge ist die, die man auch im Experiment findet. Auch existiert ein zweites kritisches Feld, bei dem die Hochfeldphase wieder in eine paramagnetische Phase übergeht. Die Größenordnung dieses kritischen Feldes entspricht der, die man experimentell findet. Die Zahl der Abweichungen ist jedoch immer noch sehr groß. So stimmt die Übergangstemperatur von der paramagnetischen in die Niederfeldphase nur näherungsweise, das kritische Feld zwischen Hoch- und Niederfeldphase ist gar um einen Faktor drei falsch. Das 3-Parameter-Modell ergibt zwar ein realistischeres kritisches Feld, führt aber im Gegenzug dazu, dass sich die Hochfeldphase nun bis zu $H = 0$ erstreckt. Dies wurde experimentell nicht beobachtet.

Auch die bisherigen Mehrteilchenaustauschmodelle erklären also das magnetische Verhalten von festem ^3He bei Temperaturen um 1 mK noch nicht befriedigend. Ob

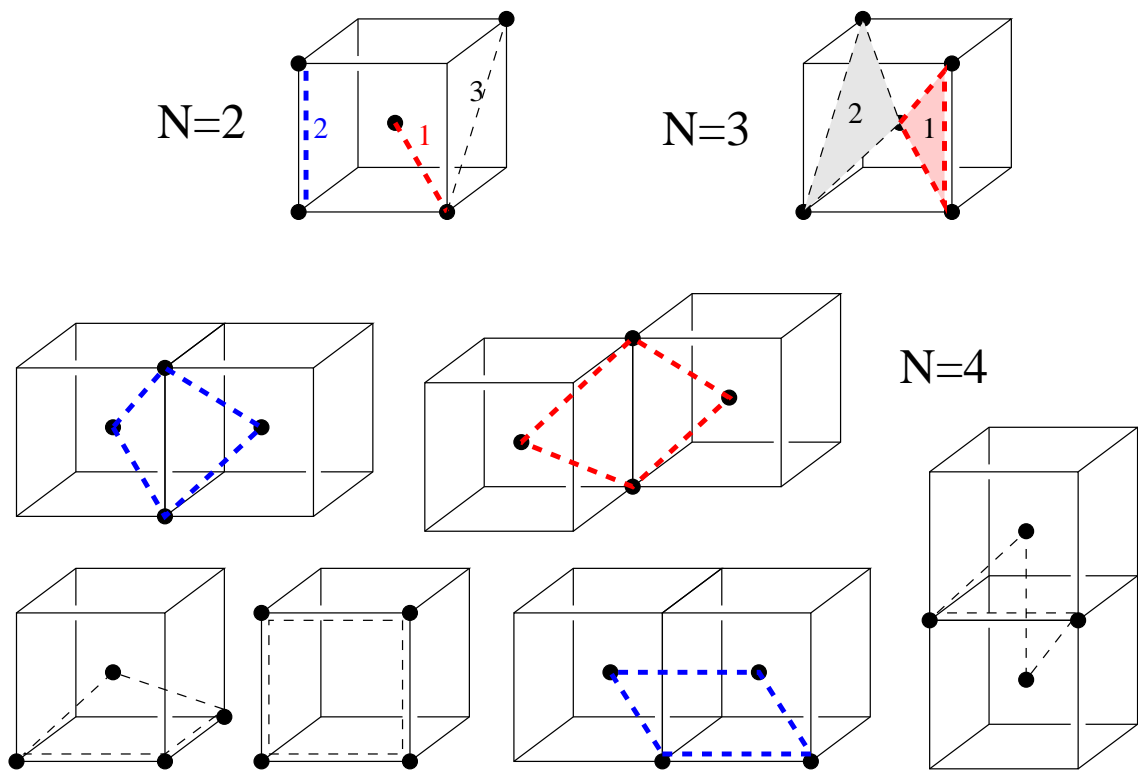


Abbildung 3.2: Mögliche Mehrteilchenaustauschprozesse in bcc ³He nach Ceperley und Jacucci [21]. Die rot hervorgehobenen Prozesse liefern den größten Beitrag zum Hamiltonoperator. Der Beitrag der Blauen ist eine Größenordnung kleiner, aber immer noch wichtig.

die Hinzunahme von Austauschprozessen noch höherer Ordnung und noch mehrerer Nachbarn das richtige Ergebnis bringt, ist wegen der aufwendigen Rechnungen noch offen.

3.2 Gepulste NMR

3.2.1 Prinzip der gepulsten NMR

In der gepulsten NMR erzeugt man mit einem Radiofrequenzpuls kurzzeitig ein oszillierendes Feld \mathbf{H}_1 , das senkrecht orientiert ist zu einem statischen, die Probe polarisierenden Feld $\mathbf{H}_0 = H_0 \hat{z}$ in z -Richtung. Strahlt man mit der Frequenz $\omega_L = \gamma H_0$ ein (γ : gyromagnetisches Verhältnis des Probenmaterials), so erhält man nach Ende des rf-Pulses einen Resonanzpuls aus der Probe, der exponentiell mit der

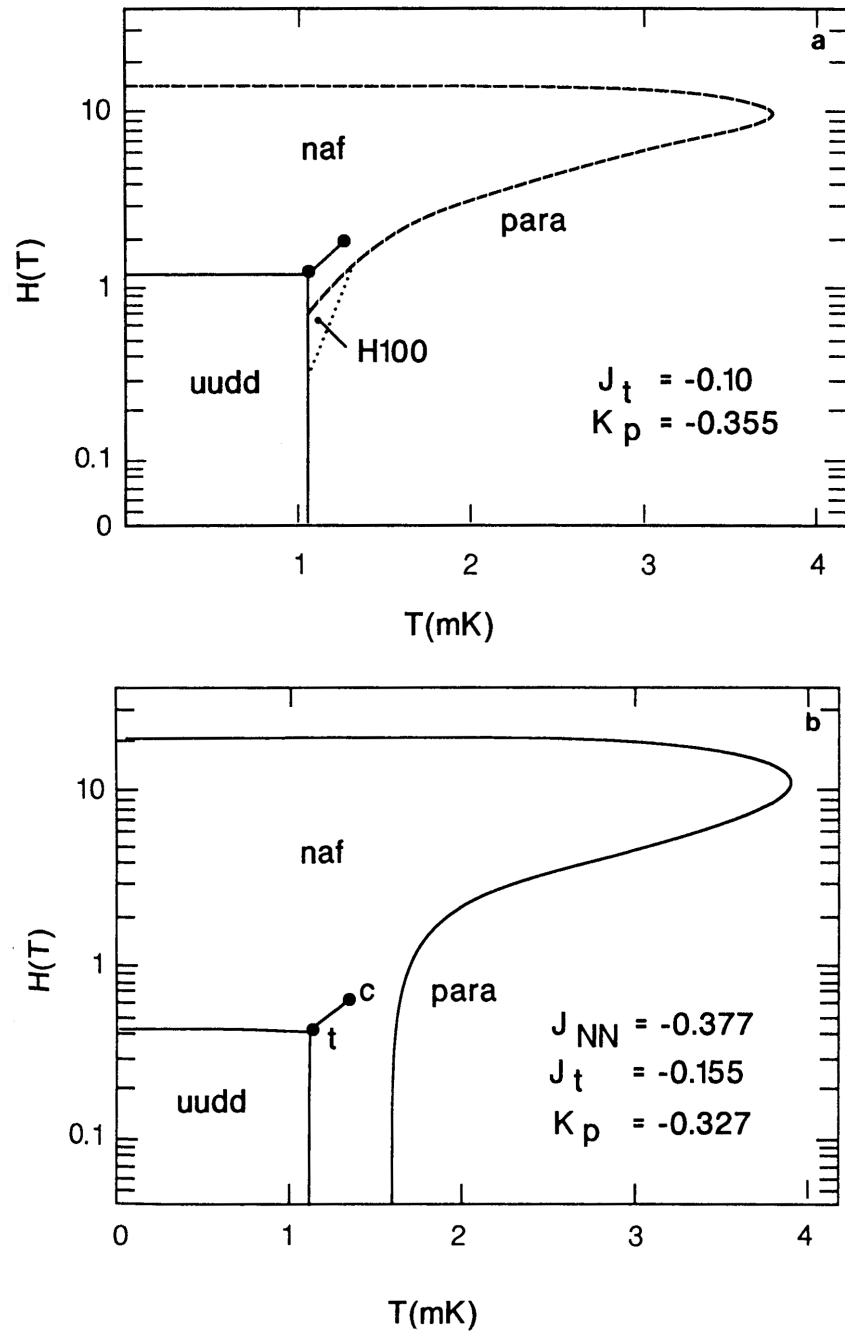


Abbildung 3.3: Theoretisches Phasendiagramm für ^3He mit (a) zwei Austauschparametern (Dreikörperingtausch, planarer Vierkörperingtausch) bzw. (b) drei Austauschparametern (Paartausch, Dreikörperingtausch, planarer Vierkörperingtausch). Aus Os-heroff [12].

Spin-Gitter-Relaxationszeit T_1 abfällt. Die fouriertransformierte Formfunktion ist eine Lorentzlinie, deren Amplitude proportional zur Gleichgewichtsmagnetisierung M_0 ohne Einwirkung der rf-Feldes ist. Dabei zeigt der Vektor $\mathbf{M}_0 = M_0 \hat{\mathbf{z}}$ in z -Richtung.

Ausgangspunkt für alle theoretischen Betrachtungen sind die Bewegungsgleichungen für eine Probenmagnetisierung \mathbf{M} . Sie lauten

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = \mathbf{M} \times (\gamma \mathbf{H}). \quad (3.13)$$

Nun geht man in ein mit der Frequenz ω rotierendes Bezugssystem über. In den Bewegungsgleichungen 3.13 muss nun der Übergang zu einem effektiven Feld

$$\mathbf{H} \rightarrow \mathbf{H}_e = \mathbf{H} - \frac{\boldsymbol{\omega}}{\gamma} \quad (3.14)$$

vollzogen werden. Das Radiofrequenzfeld kann man nun in zwei Komponenten zerlegen: eine rechtszirkular polarisierte und eine linkszirkular polarisierte. Dabei soll die Frequenz des rotierenden Bezugssystems jetzt der Frequenz ω_L des oszillierenden Felds entsprechen. Man erhält dadurch eine statische Komponente von \mathbf{H}_1 senkrecht zu \mathbf{H}_0 . Die zweite Komponente ist um $2\omega_L$ off-resonant und damit vernachlässigbar.

Vor dem Einschalten des Pulses ist die Magnetisierung $M_{\parallel} = M_0$ parallel zum äußeren Feld gerichtet. Solange der Puls aktiv ist, übt das H_1 -Feld ein Drehmoment auf die Magnetisierung der Probe aus, d.h. die Magnetisierung wird aus der z -Richtung „getippt“ und es bildet sich eine von Null verschiedene Komponente M_{\perp} in der xy -Ebene senkrecht zu \mathbf{H}_0 aus. Nach dem Ende des Pulses relaxieren beide Komponenten durch Spin-Spin- und Spin-Gitter-Wechselwirkung, so dass sich nach einiger Zeit wieder $M_{\perp} = 0$ und $M_{\parallel} = M_0$ wird. Dieses Verhalten beschreiben die (phänomenologischen) Blochgleichungen

$$\begin{aligned} \frac{dM_x}{dt} &= \gamma(\mathbf{M} \times \mathbf{H})_x - \frac{M_x}{T_2} \\ \frac{dM_y}{dt} &= \gamma(\mathbf{M} \times \mathbf{H})_y - \frac{M_y}{T_2} \\ \frac{dM_z}{dt} &= \gamma(\mathbf{M} \times \mathbf{H})_z - \frac{M_z - M_0}{T_1} \end{aligned} \quad (3.15)$$

M_{\perp} ist dabei in M_x und M_y zerlegt worden, T_2 ist die Spin-Spin-Relaxationszeit. Typischerweise gilt $T_2 \ll T_1$. Wie man sieht, ist das Resonanzsignal ein exponen-

tieller Abfall mit der Zeitkonstante T_2 . Bei Rücktransformation aus dem mit ω_L rotierenden Bezugssystem ins Laborsystem wird daraus ein exponentiell gedämpfter rf-Puls, der sogenannte FID („free induction decay“)

$$FID \propto e^{-\frac{t}{T_2}} \sin(\omega_L t). \quad (3.16)$$

Nach [22] folgt dann mit Gl. 3.15, dass die Fouriertransformierte des FID eine Lorentzlinie an der Resonanzfrequenz ω_L ist, deren Amplitude proportional zur Magnetisierung M_0 ist.

3.2.2 Gepulste NMR an festem ^3He

In der paramagnetischen Phase erwartet man für das kubische ^3He (bcc) nur einen Lorentzpeak bei der Larmorfrequenz ω_L .

In der Niederfeldphase kann die Spindynamik nach Osheroff et al. [7] durch zwei Gleichungen beschrieben werden. Die Eine behandelt die Drehmomente der internen und externen Felder auf die Spins. Die Andere beschreibt die Tatsache, dass die Magnetisierung außerhalb des Gleichgewichts Rotationen im Spinraum erzeugt. Man erhält

$$\begin{aligned} \frac{d\mathbf{S}}{dt} &= \gamma \mathbf{S} \times \mathbf{H} - \lambda (\mathbf{d} \cdot \boldsymbol{\ell}) (\mathbf{d} \times \boldsymbol{\ell}) \\ \frac{d\mathbf{d}}{dt} &= \gamma \mathbf{d} \times \left(\mathbf{H} - \frac{\gamma}{\chi} \mathbf{S} \right) \end{aligned} \quad (3.17)$$

Hierbei ist $\boldsymbol{\ell}$ der Normalenvektor zu den ferromagnetischen Ebenen der U2D2-Struktur und \mathbf{d} die Achse, an der die Untergittermagnetisierung ausgerichtet ist. λ beschreibt die Stärke der Dipolenergie, \mathbf{S} den Gesamtspin und χ die magnetische Suszeptibilität. Im Nullfeld lautet die Lösung $\Omega_0^2 = \gamma^2 \lambda / \chi$. Korrigiert man diesen Wert noch durch Einbeziehung von Nullpunktsfluktuationen, so erhält man $\Omega_0 / 2\pi = 880$ kHz in guter Übereinstimmung mit dem von Osheroff et al. [7] gemessenen Wert $\Omega_0 / 2\pi = 825$ kHz. Für $H \neq 0$ ergeben sich mit der Larmorfrequenz ω_L und $\cos \theta = \mathbf{d} \cdot \boldsymbol{\ell}$ aus Gl. 3.17 die Lösungen

$$\omega_i^2 = \frac{1}{2} \left(\omega_L^2 + \Omega_0^2 \pm \sqrt{(\omega_L^2 - \Omega_0^2)^2 + 4\omega_L^2 \Omega_0^2 \cos^2 \theta_i} \right). \quad (3.18)$$

Aus der Tatsache, dass die drei Magnetisierungsachsen senkrecht aufeinander stehen

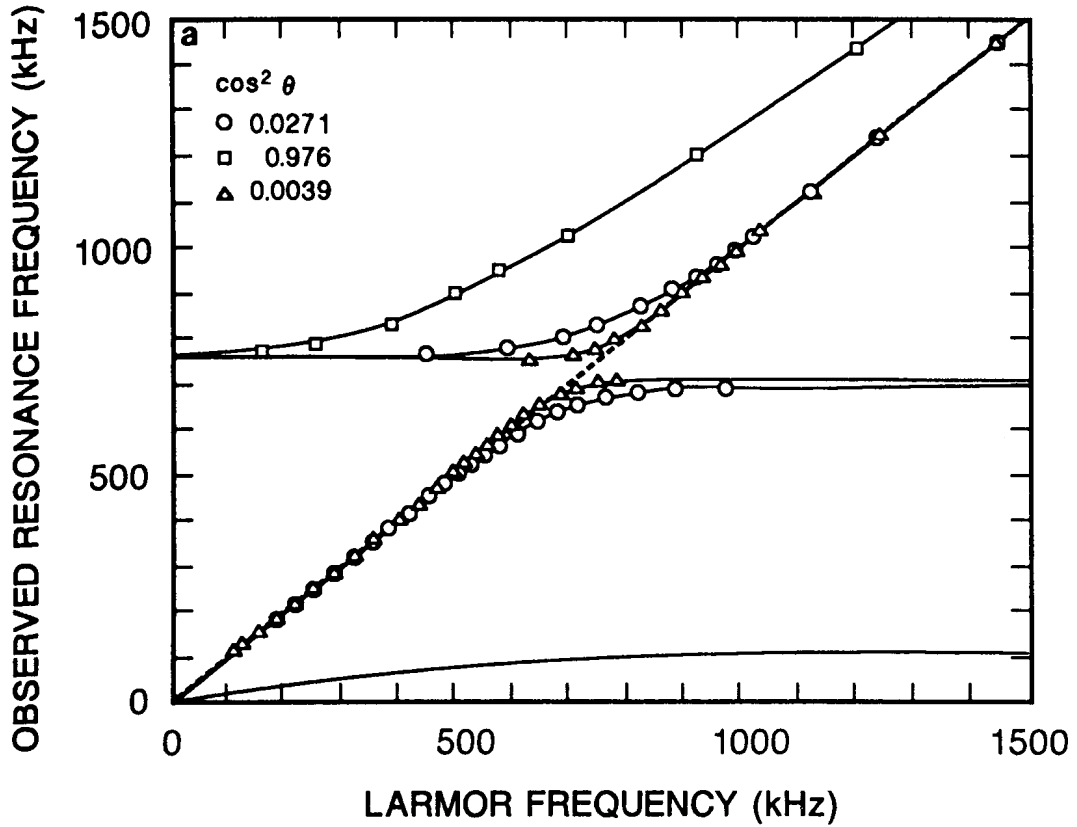


Abbildung 3.4: NMR-Spektrum eines ^3He -Einkristalls mit drei Domänen. Die durchgezogenen Linien sind aus Gl. 3.18 durch Fit der Daten nach θ_i gewonnen. Es ergibt sich $\sum \cos^2 \theta_i \approx 1$. Die oberen und unteren Linien zu dem gleichen θ_i resultieren aus der \oplus -Lösung bzw. der \ominus -Lösung von Gl. 3.18. (Aus Osheroff et al. [7]).

müssen ($\sum \cos^2 \theta_i = 1$), folgt für die drei Lösungen

$$\Omega_0^2 = \frac{\omega_1^4 + \omega_2^4 + \omega_3^4 - \omega_L^2(\omega_1^2 + \omega_2^2 + \omega_3^2)}{\omega_1^2 + \omega_2^2 + \omega_3^2 - 2\omega_L^2}. \quad (3.19)$$

Abb. 3.4 zeigt eine Messung von Osheroff et al. [7]. Für die durch Fit an die Daten gewonnenen θ_i ergibt sich $\sum \cos^2 \theta_i \approx 1$. Auch war bei etwa 20 Messungen die kleinste beobachtete Zahl von Resonanzen drei und die Zweitkleinste sechs. Diese beiden Ergebnisse sind zusammen nicht mit einer normal antiferromagnetischen Struktur (NAF) oder einer CNAF-Struktur vereinbar. $UnDn$ -Strukturen mit $n > 2$ und einige exotischere Strukturen können allerdings nicht ausgeschlossen werden.

Schließlich ergaben sich Indizien, dass Gl. 3.18 und Gl. 3.19 die ungesättigte Spin-

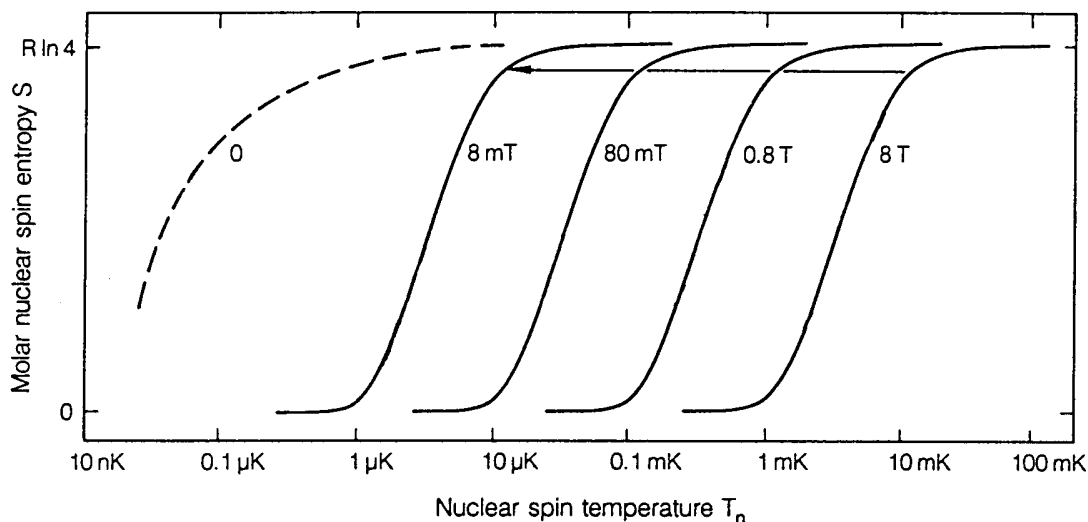


Abbildung 3.5: Kernspinentropie von Kupfer in verschiedenen Magnetfeldern. Der Pfeil beschreibt den Weg bei der adiabatischen Entmagnetisierung. Die gestrichelte Linie bezeichnet die Abnahme der Entropie in Abwesenheit eines Magnetfelds durch spontane antiferromagnetische Ordnung. (Aus [15]).

dynamik nur näherungsweise beschreiben. Insbesondere beobachtet man in höheren Feldern Abweichungen von den berechneten Werten in Form kleiner Frequenzverschiebungen (Osheroff et al. [7], Feng et al. [8], Sasaki et al. [9]).

3.3 Adiabatische Kernentmagnetisierung

Die adiabatische Kernentmagnetisierung basiert auf dem gleichen Prinzip wie die Entmagnetisierung paramagnetischer Salze. Bei vollständig ungeordneten Spins, d.h. ohne Einwirkung eines äußeren Magnetfelds, beträgt die Entropie für einen Drehimpuls J

$$S = R \ln(2J + 1). \quad (3.20)$$

Nimmt die Temperatur nun ab, so wird schließlich die Wechselwirkung zwischen den Spins vergleichbar mit der thermischen Energie, d.h. es tritt eine spontane magnetische Ordnung ein, in deren Verlauf die Entropie gegen Null geht. In Anwesenheit eines magnetischen Feldes sind die Spins bereits teilweise geordnet. Diese Ordnung der Spins durch das Magnetfeld führt dazu, dass die Entropie schon bei höherer Temperatur abnimmt (Abb. 3.5). Durch Vorkühlen kann man nun bei

hohem Magnetfeld die Spinentropie absenken. Durch anschließendes adiabatisches Entmagnetisieren bewegt sich das System bei konstanter Entropie entlang des Pfeils in Abb. 3.5. Nach dem Entmagnetisierungsvorgang befindet man sich also auf der Entropie-Temperatur-Kurve eines kleineren Magnetfelds, was einer Temperaturerniedrigung entspricht. Es gilt

$$T_f = \frac{T_i}{B_i} \sqrt{B_f^2 + b^2}. \quad (3.21)$$

Die Indizes „i“ und „f“ stehen dabei für „initial“ und „final“. b ist das innere Feld, das durch die benachbarten magnetischen Momente im Paramagneten verursacht wird.

Der grundlegende Unterschied zwischen der Entmagnetisierung von paramagnetischen Salzen und der Kernentmagnetisierung liegt im magnetischen Moment: es ist für Kerne etwa 2000mal kleiner als für Elektronen. Weil die Ordnungstemperatur aufgrund der Dipol-Dipol-Wechselwirkung proportional zum Quadrat des magnetischen Moments μ ist ($T_{c,Cu} < 60$ nK nach [23]), kann man auf diese Weise sehr tiefe Temperaturen erreichen. Der Nachteil ist, dass es gerade wegen der niedrigen Ordnungstemperatur wesentlich schwieriger ist, dem Kernspinsystem einen substantiellen Entropiebetrag zu entziehen. Dies kann man nur mit $T_i < 20$ mK und $B_i > 5$ T erreichen.

Die Endtemperatur T_f ist allerdings die Temperatur der Kernspins. Um eine externe Probe zu kühlen, muss die Kühlleistung auf die Elektronen übertragen werden. Dies geschieht auf einer Zeitskala T_1 , der Spin-Gitter-Relaxationszeit (Tab. 5.1). Bei tiefen Temperaturen beträgt T_1 für Isolatoren Tage oder Wochen. Für Metalle ist T_1 wesentlich kürzer und kann mittels Gl. 5.7 aus der Korringakonstante κ berechnet werden. Daher ist es zum Erreichen einer niedrigen Elektronentemperatur unumgänglich, Metalle zu entmagnetisieren.

In der Praxis hat man immer ein Wärmeleck \dot{Q} , das ständig das Gleichgewicht zwischen Elektronen und Kernspins stört, indem es das Elektronensystem kontinuierlich erwärmt. Um eine möglichst niedrige Elektronentemperatur T_e zu erreichen, darf man nach [15] nur bis zu einem optimalen Endfeld

$$B_{f,opt} = \sqrt{\frac{\mu_0 \kappa \dot{Q}}{n \lambda_n}} \quad \text{für } b \ll B_{f,opt} \quad (3.22)$$

entmagnetisieren. Dabei ist μ_0 die Permeabilität des Vakuums und $\lambda_n = \frac{N_L I(I+1) \mu_0 \mu_n^2 g_n^2}{3k_B}$ die nukleare Curiekonstante. Die Temperatur des Elektronen-

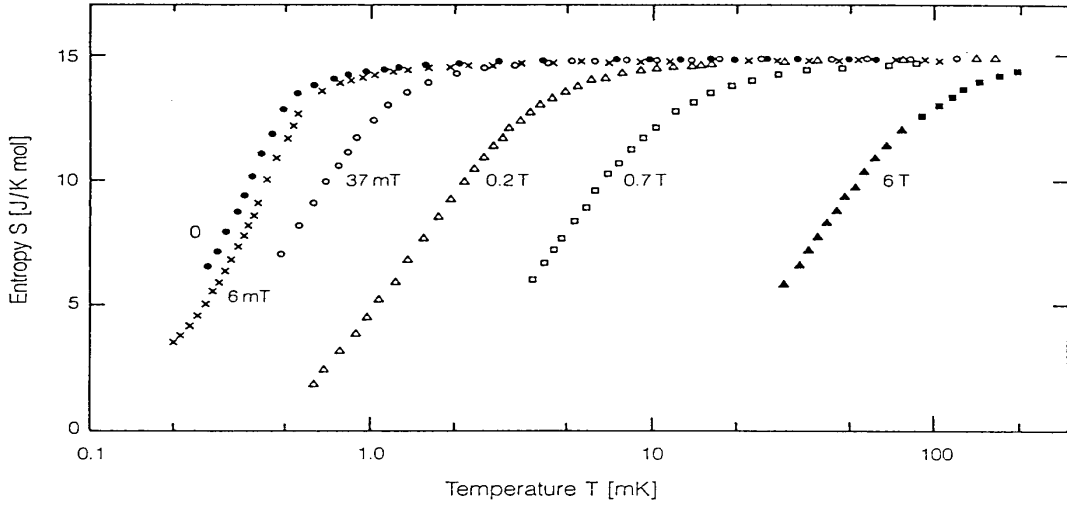


Abbildung 3.6: Kernspinentropie von PrNi_5 in verschiedenen Magnetfeldern bei tiefen Temperaturen. Aus [15].

systems ist dann

$$T_{e,\min} = 2T_n(B_{f,\text{opt}}), \quad (3.23)$$

also immer noch doppelt so hoch wie die Kerntemperatur T_n .

Eine wesentliche Verbesserung der Kühlleistung erzielt man durch die Verwendung von Van-Fleck-Paramagneten wie z.B. PrNi_5 als Kühlmedium. Van-Fleck-Paramagneten enthalten seltene Erdionen mit einem unmagnetischen Singulett-Grundzustand der 4f-Elektronen. Bei Einwirkung eines äußeren Feldes B werden höhere Nichtsingulettzustände in den 4f-Grundzustand gemischt. Dadurch erhält man einen temperaturunabhängigen Beitrag zur Suszeptibilität und ein Hyperfeinfeld B_{int} . Am Kernort erscheint dieses Feld im Verhältnis zu B um den Faktor $K = B_{\text{int}}/B$ verstärkt. Die Kerne sehen also ein effektives Feld

$$B_{\text{eff}} = (1 + K)B. \quad (3.24)$$

Nach [15] ist für PrNi_5 $K = 11.2$. Wegen des daraus resultierenden hohen effektiven Feldes erreicht man bereits bei verhältnismäßig schlechten Vorkühlbedingungen eine deutliche Entropiereduktion (Abb. 3.6). Dafür ist durch die einsetzende Kernordnung die erreichbare Minimaltemperatur bei der Entmagnetisierung von hyperfeinverstärkten Van-Fleck-Paramagneten begrenzt. Die kleinste experimentell erreichte Endtemperatur betrug $T_{f,\min} = 0.19$ mK für PrNi_5 [15].

Kapitel 4

Experimenteller Aufbau

4.1 Gesamtaufbau

Einen Überblick über den Gesamtaufbau des Experiments gibt Abb. 4.1. Die wesentlichen Komponenten sind das Kühlsystem, das Gashandlingsystem, die NMR-Apparatur und die Messzelle. Zur Verdeutlichung der ^3He -Kapillarführung ist das Kühlsystem etwas detaillierter gezeichnet.

Um thermische Kurzschlüsse zu vermeiden, werden die ^3He -Zuleitungen auf verschiedenen Temperaturniveaus thermisch abgefangen, d.h. die Kapillare soll dort auf einer großen Länge thermischen Kontakt mit dem Kühlsystem haben. Wegen des geringen zur Verfügung stehenden Platzes wird die Kapillare auf 5 mm dicke Kupferdorne gewickelt und dann verlötet (Abb. 4.2). Diese Kupferdorne werden nun an die entsprechenden Stellen geschraubt.

Zwischen Destillationskammer und Zwischentauscher und zwischen Zwischentauscher und Mischkammer ist zusätzlich jeweils ca. 45 cm Kapillarlänge eingebaut, da dort die natürliche Leitungslänge (d.h. der physikalische Abstand der Niveaus) besonders gering ist. Die Kapillare ist aus Platzgründen spiralförmig gewickelt.

Je kleiner das Temperaturniveau der Abfangung ist, desto größer wird die Kapillarlänge und desto kleiner wird der Kapillardurchmesser (Tab. 4.1). Bis zur Destillationskammer werden zwei getrennte Zuleitungskapillaren geführt, die sich dort vereinigen. Zum Einen wird so die Impedanz der Zuleitung verringert, zum Anderen vermeidet man ein Kryobombe, falls Verunreinigungen in einer der beiden Kapillaren ausfrieren und einen Block bilden. Das wegen seines niedrigen Siedepunkts gasförmige ^3He kann dann durch den zweiten (hoffentlich) noch offenen Strang aus der Zelle entweichen.

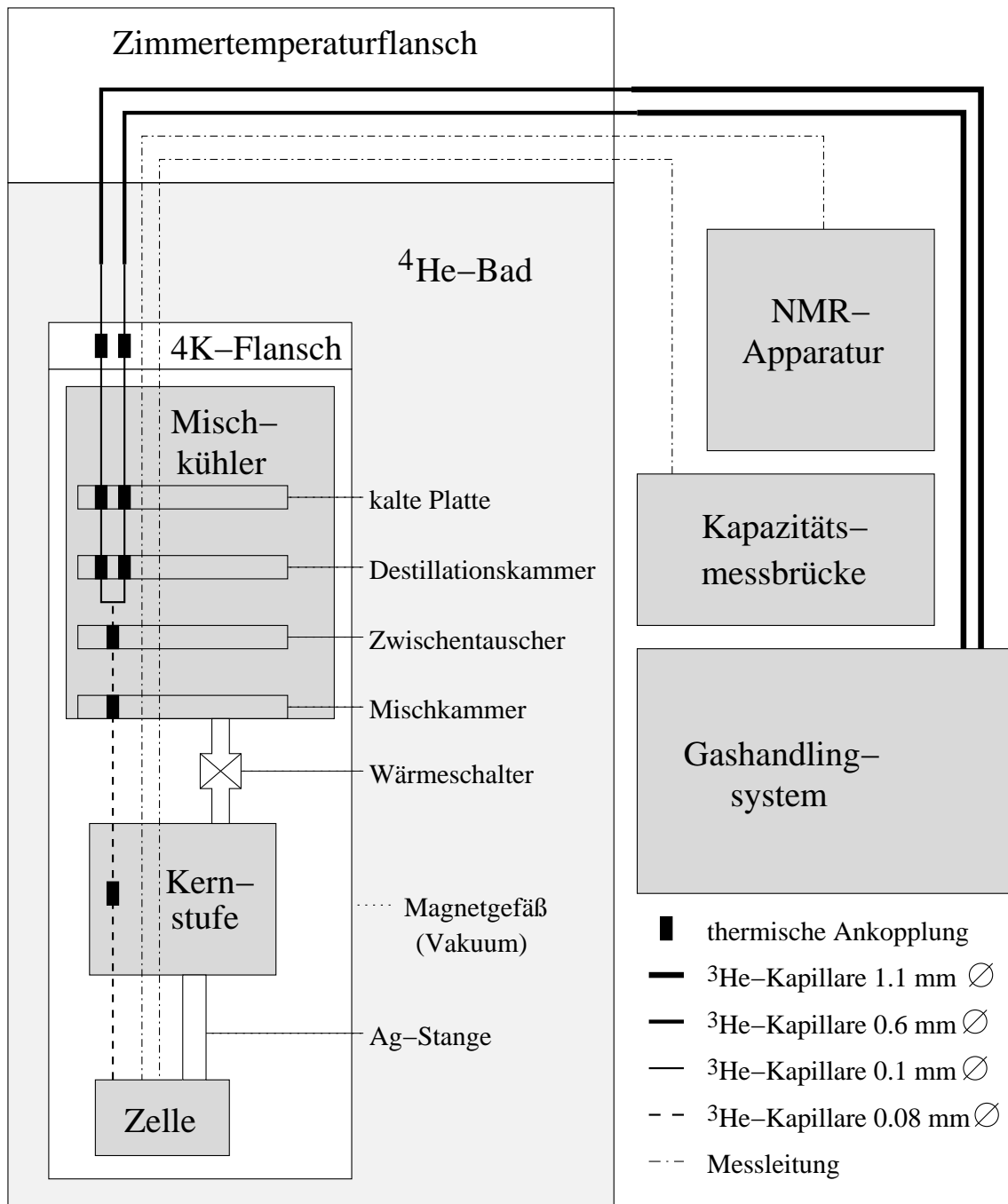


Abbildung 4.1: Schematische Darstellung des Gesamtaufbaus des Experiments. Die Kapillaren sind ab dem 4 K-Flansch an jedes Temperaturniveau thermisch angekopelt.

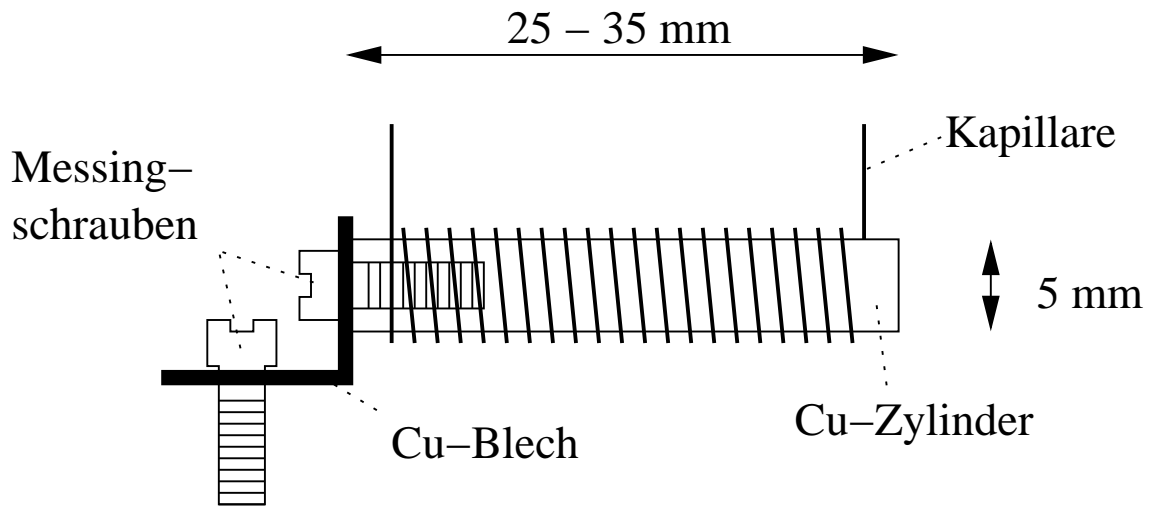


Abbildung 4.2: Schematische Zeichnung des Aufbaus einer einzelnen thermischen Abfangung der ^3He -Kapillaren. Mit der Schraube wird die gesamte Konstruktion über einen Presskontakt thermisch an das entsprechende Temperaturniveau angekoppelt.

thermisches Niveau	Temperatur	Kapillarlänge	Kapillardurchmesser
4K-Flansch	4.2 K	0.15 m	0.6 mm
kalte Platte	1.2 K	0.45 m	0.1 mm
Destillationskammer	0.7 K	1.1 m	0.1 mm
Zwischentauscher	0.02 K	1.2 m	0.08 mm
Mischkammer	0.006 K	1.2 m	0.08 mm
Kernstufe	0.0004 K	2.5 m	0.08 mm

Tabelle 4.1: Daten der thermischen Abfangungen der ^3He -Leitungen an den einzelnen Temperaturniveaus.

4.2 Kühlsystem

Zur Kühlung der Zelle wurde die „Bayerische Millimühle 2“ (Abben. 4.3 und 4.4) des Walther-Meißner-Instituts verwendet. Sie besteht aus einer PrNi₅-Kernstufe, die mit einem ³He/⁴He-Mischkryostaten vorgekühlt wird.

Die 0.9 mol PrNi₅ der Kernstufe werden zunächst durch ein äußeres Magnetfeld von 5.5 T polarisiert. Die dabei entstehende Wärme wird vom Entmischungskryostaten weggekühlt. Diese Vorkühlzeit beträgt in den vorliegenden Experimenten 3-4 Tage, die Endtemperatur des Mischkühlers liegt bei $T_{\text{MK}} = 6$ mK. Nach der adiabatischen Entmagnetisierung auf ein Endfeld von $B = 44$ mT liegt die Endtemperatur der Kernstufe bei $T_{\text{KS}} = 0.47$ mK. Das Endfeld wurde nicht so gewählt, dass es Gl. 3.22 erfüllt. Vielmehr wurde versucht, die die Frequenz ω_L der Kupfer-NMR-Linie (siehe Abschn. 3.2) in einen Frequenzbereich mit möglichst geringem Untergrund zu schieben.

4.3 NMR-Anordnung

Der Aufbau der Apparatur für gepulste NMR ist in Abb. 4.5 dargestellt. Das gesendete Signal ist ein Sinuswellenzug, dessen Frequenz der Resonanzfrequenz des zu messenden Systems entspricht. Er wird erzeugt von einem Rhode&Schwarz AF-GU Funktionsgenerator, der Signalfrequenzen von 1 μ Hz bis 20 MHz ausgeben kann. Dieses Signal wird dann mit einem Breitbandverstärker (ENI Model 325LA, 250kHz-150 MHz) verstärkt. Da der Verstärkungsfaktor des ENI (50 dB) unveränderlich ist, wird ihm ein Abschwächer vorgeschaltet (Schlumberger Type B1200). Das nachfolgende Diodenkästchen verhindert, dass der ENI durch den Resonanzpuls aus der Probe ins Schwingen gerät.

Das Signal gelangt nun über ein computergesteuertes Relais in eine der NMR-Spulen (Cu-Spule und ³He-Spule in Abb. 4.5). Dort wird dann der Resonanzpuls (FID) induziert, der über einen geschützten Eingang in den Vorverstärker (Matec Model 253) und schließlich in den Hauptverstärker (Matec Model 605, 100 kHz-20 MHz) gelangt. Weil der Vorverstärker nach dem Ende der Überlastung durch den gesendeten Puls eine Totzeit von gerade mal 5 – 10 μ s hat, geht nur wenig vom FID-Signal verloren. Das LeCroy 9310AM Digitaloszilloskop wartet zunächst die Totzeit des Verstärkers ab („trigger delay“), zeichnet dann den Resonanzpuls auf, digitalisiert ihn und fouriertransformiert ihn mit einem internen FFT-Algorithmus. Dieses Amplitudenspektrum wird dann vom Computer ausgelesen.

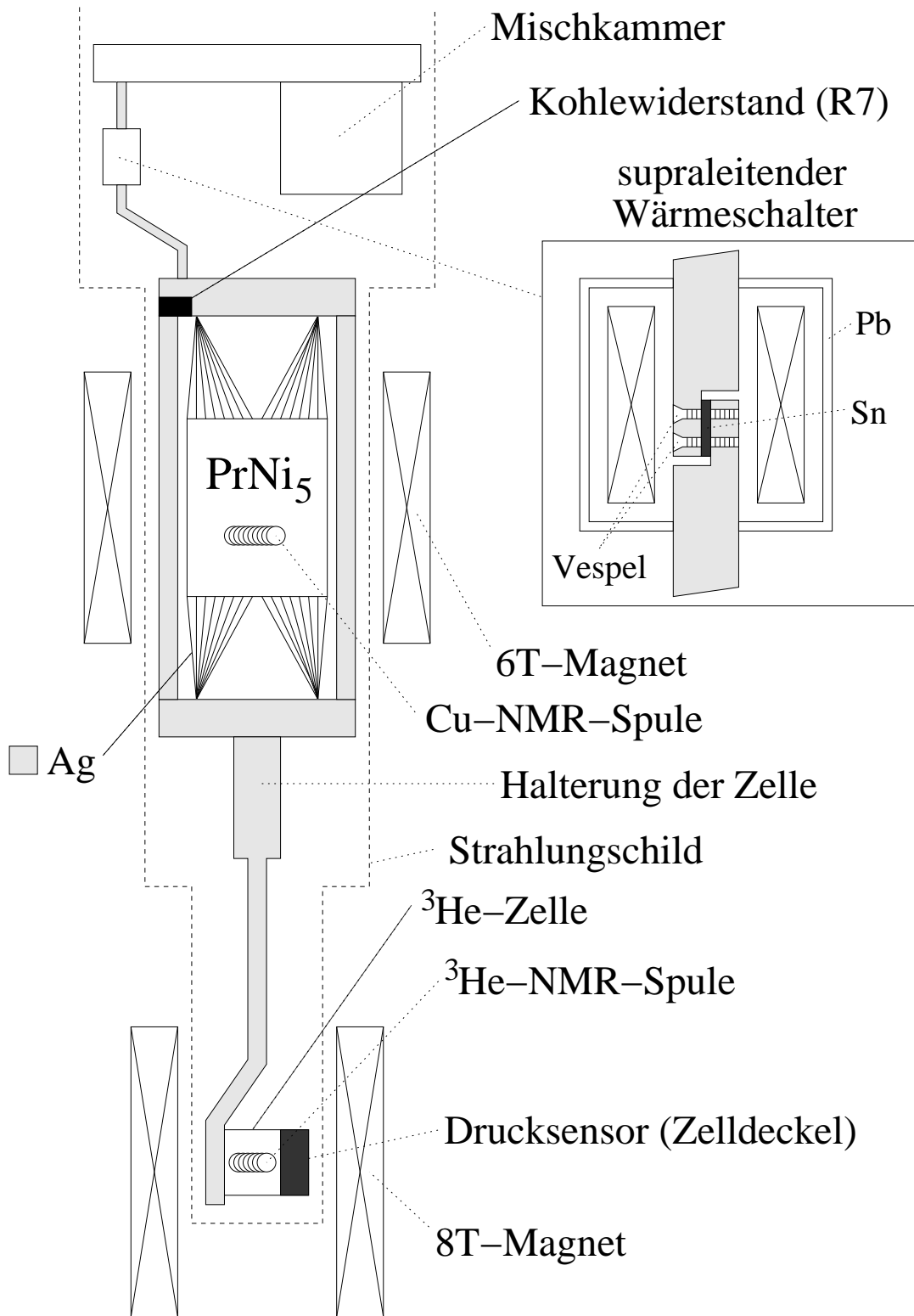


Abbildung 4.3: Schematische Darstellung von Mischkammer und Kernstufe des verwendeten Ultratieftemperaturkühlsystems, der sogenannten „Bayerischen Millimühle 2“.



Abbildung 4.4: Foto der PrNi_5 -Kernstufe der „Bayerischen Millimühle 2“. Im unteren Bildteil ist die Kernstufe mit den PrNi_5 -Stäben zu sehen. Das oberste sichtbare Niveau ist die Mischkammer, dazwischen sieht man die beiden Wärmeschalter. Die Zelle befindet sich ganz unten ausserhalb des Bildes.

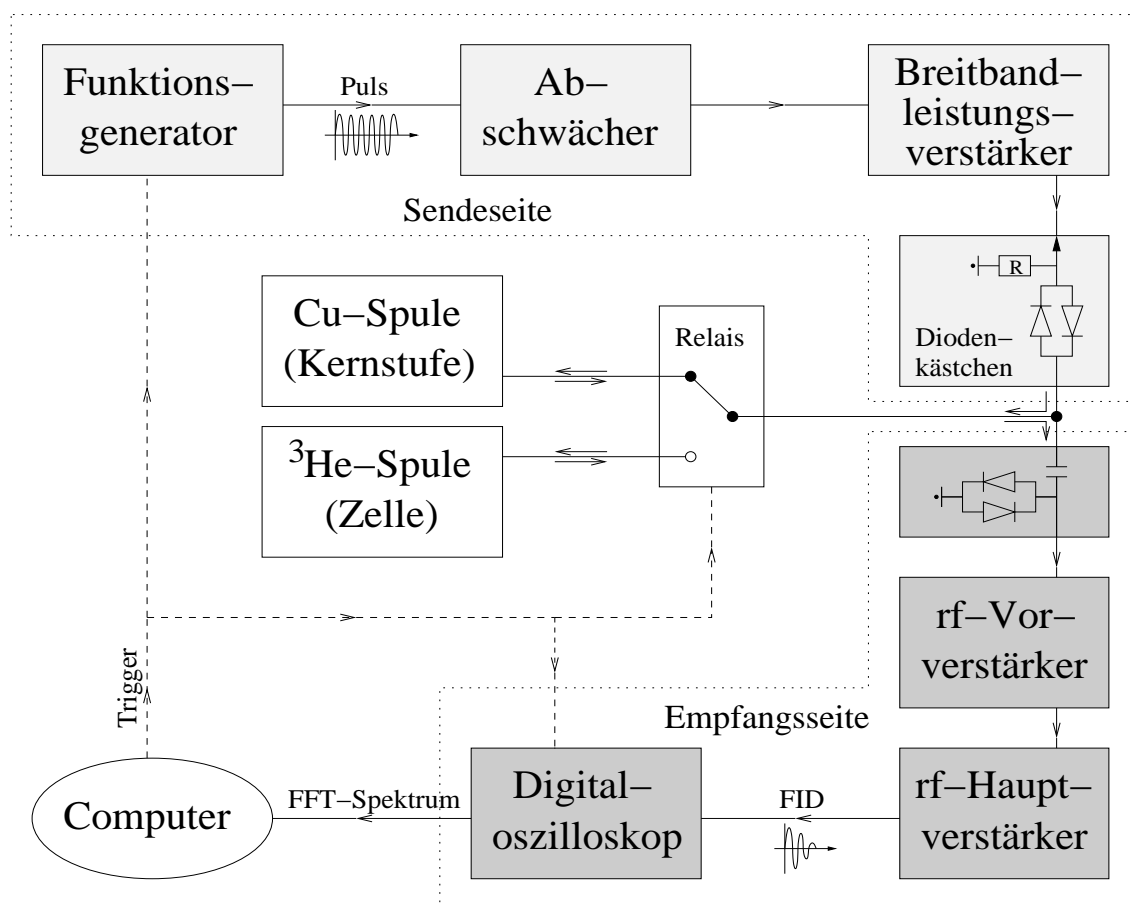


Abbildung 4.5: Schematische Darstellung der verwendeten Apparatur für gepulste NMR.

Das äußere Magnetfeld B_0 , das die Spins polarisiert und somit die Resonanzfrequenz bestimmt, wird für die Cu-Spule vom 6 T-Magneten der Kernstufe, für die ^3He -Spule vom 8 T-Magneten erzeugt (Abb. 4.3). Der gesendete rf-Puls erzeugt in den NMR-Spulen das H_1 -Feld, mit dem die Spins aus der Richtung von B_0 getippt werden. Schließlich induzieren die relaxierenden Spins durch ihre Präzession einen Resonanzpuls (FID) in den Spulen.

Die Cu-Spule (Abb. 4.6) ist thermisch gut an die Kernstufe angekoppelt und fungiert als NMR-Thermometer. Um einen zylinderförmigen Cu-Einkristall ist eine Spule aus Silberdraht gewickelt. Kupferdraht wird nicht verwendet, um Anregungen im Spulendraht selbst zu vermeiden. Damit das Feld, das ja nur im Bereich der Skintiefe in das Kupfer eindringen kann, nicht überdämpft ist, befindet sich zwischen Kupferkristall und Spulendraht noch eine $6\mu\text{m}$ dicke Mylarfolie. Das Design der ^3He -Spule ist bei der Beschreibung der Zelle in Abschnitt 4.5 erklärt.

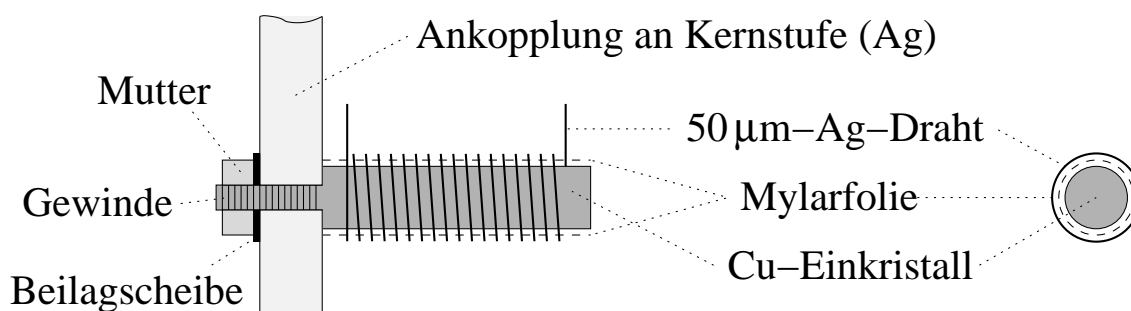


Abbildung 4.6: Schematische Darstellung der Cu-NMR-Spule für die Bestimmung der Kernstufentemperatur.

4.4 ^3He -Gashandlingssystem

Mit dem Gashandlingssystem wird das ^3He zwischen dem Vorratsbehälter („Fass“) und der Zelle hin- und hergepumpt. Insbesondere wird es bei den folgenden experimentellen Schritten gebraucht:

- Aufbau bzw. Abbau des Drucks in der Messzelle.
- Entfernung von evtl. vorhandenen Verunreinigungen aus dem Zellsinter und den Kapillarleitungen (Spülen).
- Reinigung des ^3He -Gases selbst in LN_2 -Kühlfallen.
- Druckeichung des kapazitiven Drucksensors in der Zelle.

Abb. 4.7 zeigt das verwendete Gashandlingssystem. Es besteht aus einer Hoch- und einer Niederdruckseite, die durch die Ventile V3 und V7 getrennt sind (gestrichelte Linie in Abb. 4.7). Auf der Niederdruckseite befinden sich im Wesentlichen das Fass, das Manometer P3 zur Anzeige des Fassdrucks und der Niederdruckreiniger R2. Das Fass dient als Vorratsbehälter für das unbenutzte ^3He und hat das bei Weitem größte Volumen (ca. 30 l) im gesamten System. Deswegen ist der Druck im Fass immer deutlich kleiner als der Umgebungsdruck. Das hat den Vorteil, dass bei einem möglichen Leck kein wertvolles ^3He nach außen gelangt. Eventuell eindringende Luft wird vom Reiniger R2 aufgenommen. Durch Prüfen des Reinigerdrucks im Warmen kann man also auf die Unterdruckdichtigkeit des Systems schließen.

Die Hochdruckseite ist für einen Druck von bis zu 60 bar ausgelegt. Dort befinden sich der Reiniger R1, der Dipstick D, die ^3He -Flasche, das Dipstickmanometer P2 und das Digitalmanometer P1 (Wallace&Tiernan Diptron 3 Plus). Letzteres hat

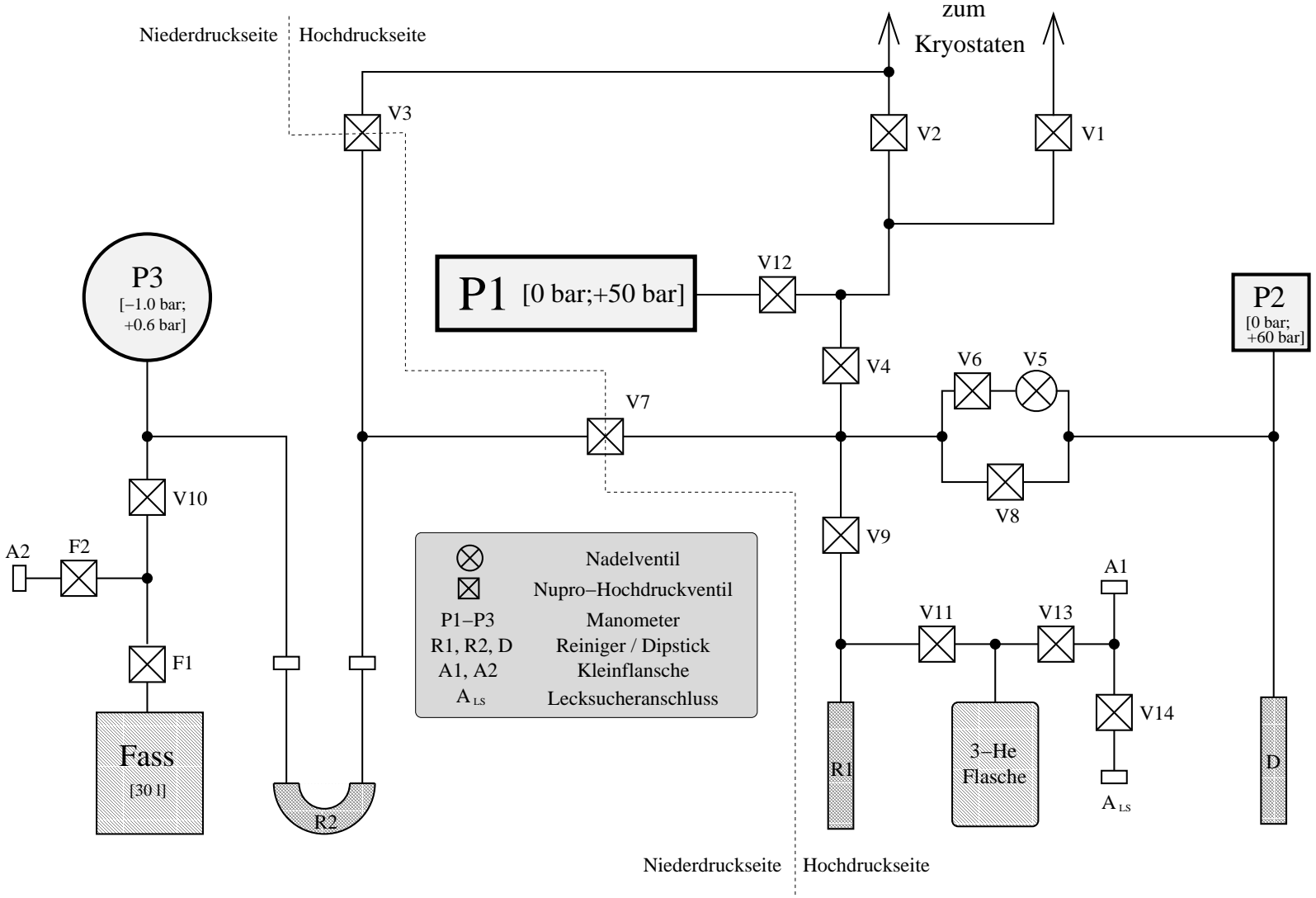


Abbildung 4.7: Plan des ³He-Gashandlingssystems.

einen Messbereich von 0-50 bar und eine Ablesegenauigkeit $\Delta P_1 = \pm 0.01$ bar. Es ist als einziges Manometer des Systems elektronisch auslesbar und wird zur Eichung des kapazitiven Drucksensors der Zelle verwendet.

Die Reiniger sind mit Aktivkohle gefüllte Metallrohre, die somit über eine große innere Oberfläche verfügen. Dort adsorbiert im Kalten entsprechend viel Gas. Die Reiniger R1 und R2 können in flüssigen Stickstoff getaucht werden. Dadurch frieren Verunreinigungen aus dem durchströmenden Gas im Reiniger aus, das ^3He selbst adsorbiert wegen seines niedrigen Siedepunkts jedoch kaum.

Der Dipstick ist ein spezieller Reiniger, der in ein L^4He -Kanne gesteckt werden kann. Dadurch adsorbiert auch ^3He an der Aktivkohle und der Dipstick funktioniert als Kryopumpe. Im Zusammenspiel mit dem Hochdruckreiniger R2 kann so ausgehend von einem Fassdruck von 0.25 bar auf in der Zelle ein Druck von bis zu 60 bar aufgebaut werden.

Mit den verschiedenen Ventilen lassen sich bestimmte Teile des Gashandlingssystems selektiv absperren und dadurch je nach Bedarf größere oder kleinere Volumen erzeugen. Weiterhin kann mit dem Nadelventil V5 der Druck aus dem Dipstick sehr dosiert abgelassen werden. Dies ist besonders während der Druckeichung hilfreich. Die Ventile V1 und V2 trennen die Hochdruckseite des Gashandlingssystems von der Zelle. Über das Ventil V3 kann der Zelldruck im Bedarfsfall direkt ins Fass abgelassen werden.

Die Kleinflansche A1, A2 und A_{LS} stellen die Verbindung zur Außenwelt dar. Über sie können etwa Teile des Systems gepumpt werden oder Gase eingefüllt bzw. weitgehend verlustfrei wieder abgelassen werden.

4.5 ^3He -Zelle

Kernstück des Experiments bildet die ^3He -Messzelle (Abben. 4.8 und 4.9). Das Design basiert auf einer ^3He -Schmelzdruckthermometerzelle von Dwight Adams, wie es am Walther-Meißner-Institut von Kurt Uhlig verwendet wurde. Der Zellkörper ist ein zylindrisches Silbertöpfchen, in das acht Silberstifte geschraubt werden. Anschließend wird die ganze Anordnung bei ca. 790°C getempert, um eine möglichst gute Wärmeleitfähigkeit zu erreichen. Zwischen den Stiften befindet sich ein Silbersinter, nur in der Mitte ist ein zylinderförmiger Raum für die NMR-Spule ausgespart.

Der Sinter besteht aus 700 \AA -Silberpulver („Japanese powder“) und hat einen Füllfaktor von 47%. Das Pulver wird zunächst im Vakuum bei einer Temperatur von

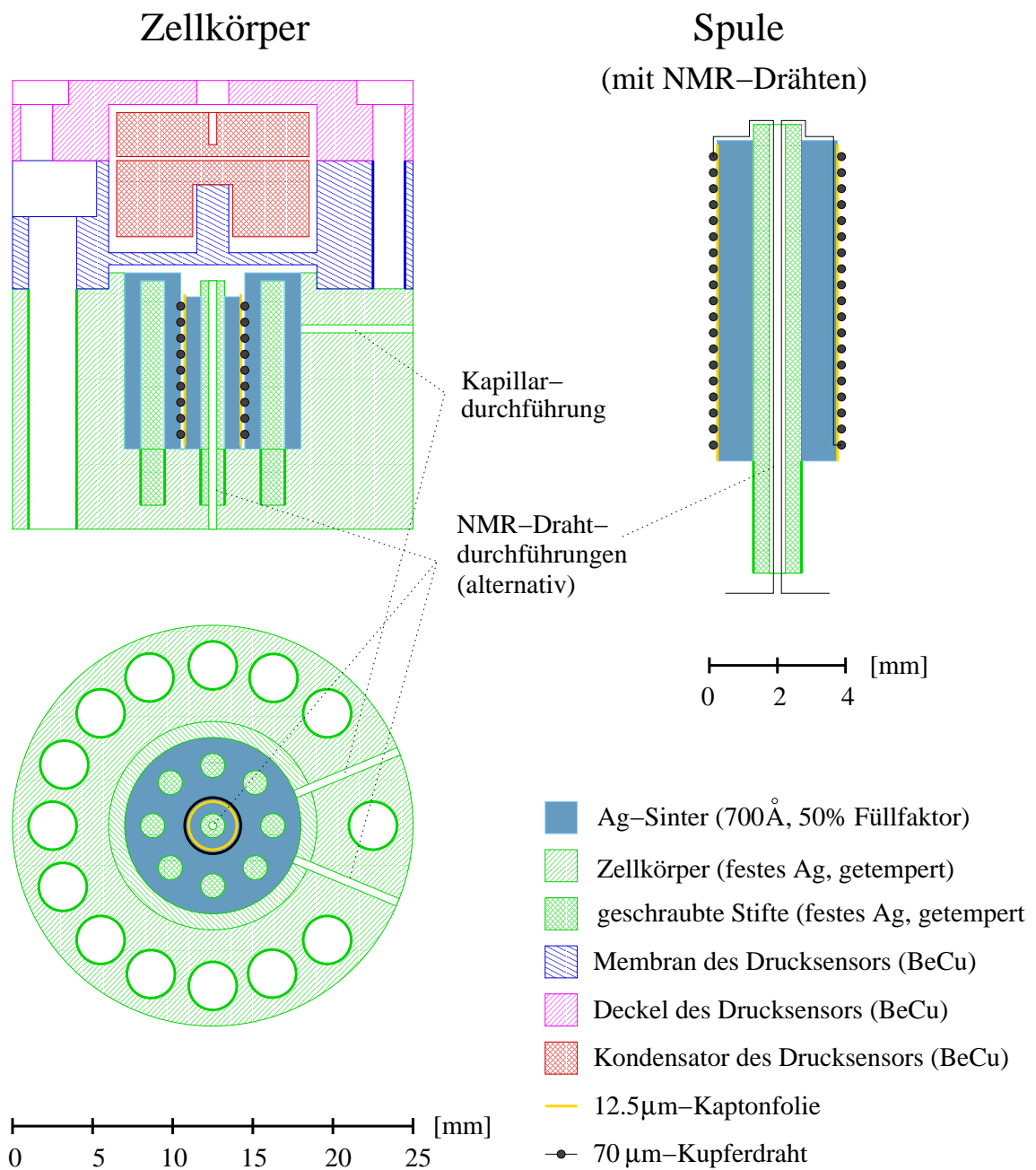


Abbildung 4.8: Schematische Darstellung der ^3He -Messzelle. Die ^3He -NMR-Spule ist auf der rechten Seite noch einmal in größerem Mastab gezeichnet.

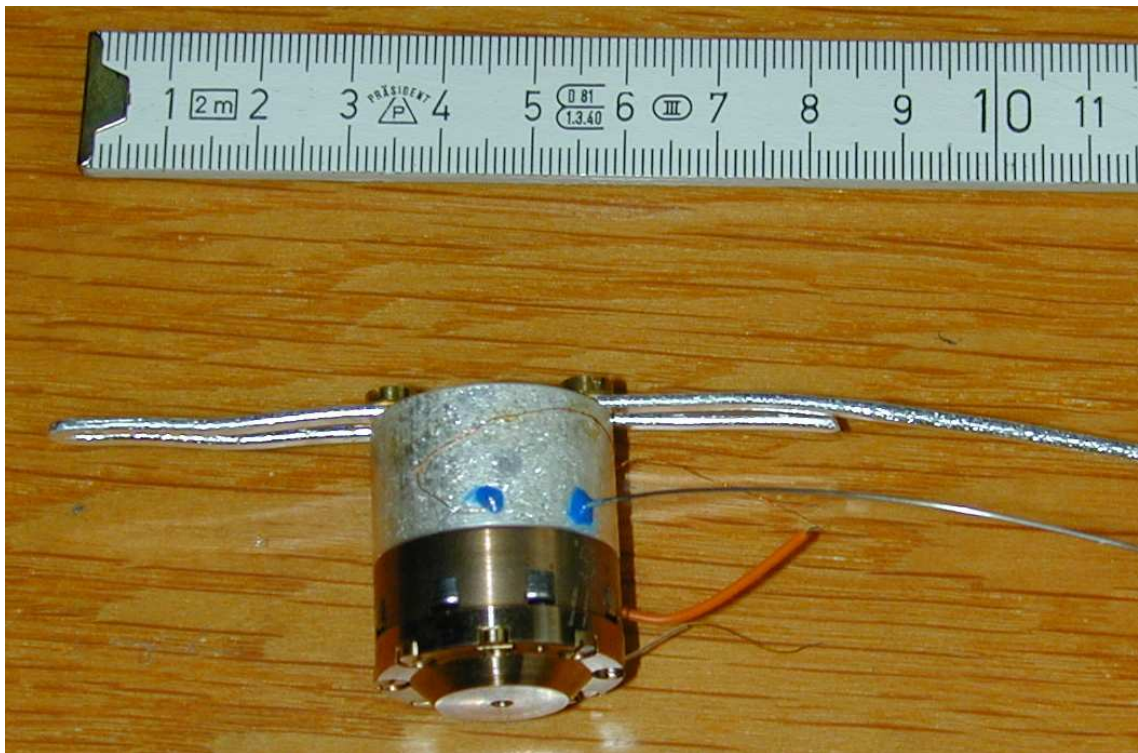


Abbildung 4.9: Foto der ^3He -Messzelle. Der dunkle Zelldeckel ist der kapazitive Drucksensor. Die blauen Punkte sind die Stellen, an denen Zuführungskapillare bzw. NMR-Spulendrähte mit Stycast eingeklebt sind. Dieses Foto stammt aus einer früheren Messung. Die thermische Ankopplung durch den Silberdraht ist deshalb anders als in Abb. 4.11.

120 – 140 °C etwa 45 min lang vorgesintert (Abb. 4.10). Damit soll die Oberfläche der Ag-Körnchen von Verunreinigungen befreit werden, ohne dass sie sich durch die Temperatureinwirkung zu stark reduziert. Der Sinter vergrößert die Oberfläche zwischen ^3He und Zellwand von wenigen cm^2 auf etwa 5 – 10 m^2 . Nur so kann man das feste ^3He trotz des hohen Kapitza-Widerstands und seiner schlechten Wärmeleitfähigkeit im gesamten freien Zellvolumen kühlen. Das Volumen des ^3He in der Zelle beträgt $V_{^3\text{He}} = 0.415 \text{ cm}^3$.

Die NMR-Spule (Abb. 4.8) befindet sich im Inneren der Zelle. Den Spulenkörper bildet ein Silberstift, der von einem Mantel aus Ag-Sinter umgeben ist. Zwischen Spule und Spulenkörper benötigt man eine 12.5 μm dicke Kaptonfolie als Abstandhalter, damit das Feld der Spule durch den (metallischen) Sinter nicht überdämpft wird. Die NMR-Drähte werden durch eine axiale Bohrung im Spulenstift und im Zellboden nach außen geführt. Die Spule wird mit dem Silberstift fest in ein Schraubloch

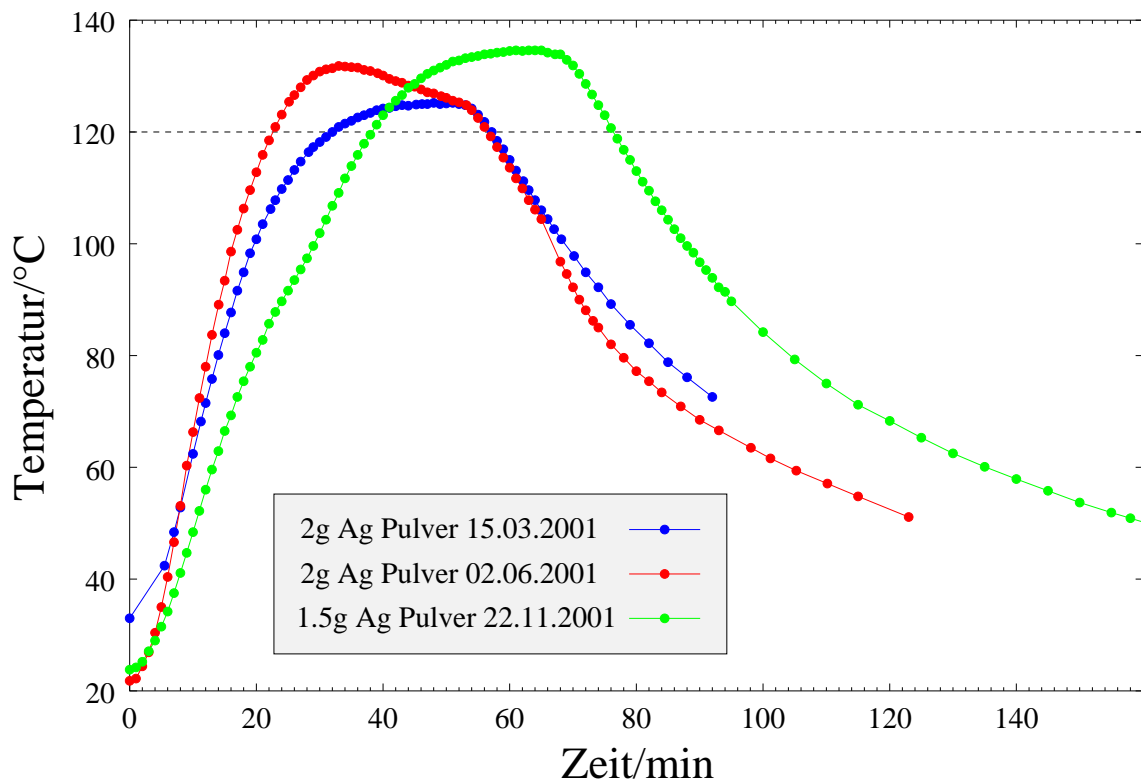


Abbildung 4.10: Typische Temperaturprofile beim Vorsintern des Ag-Pulvers. Die gestrichelte Linie (120 °C) wurde für jeweils etwa 45 min überschritten. Die Temperatur blieb jedoch immer unter 140°C, um möglichst wenig Sinteroberfläche zu verlieren.

am Boden des zylinderförmigen Hohlraums im Töpfchensinter geschraubt. Um zu vermeiden, dass dabei das untere Drahtende abgeschert wird, führt man es innerhalb der Spule in einer Ritze im Sinter des Spulenkörpers nach oben. Die wichtigsten Daten von Spule und Spulenkörper sind in Tabelle 4.2 aufgelistet.

^3He -Kapillare und NMR-Drähte werden mit blauem Stycast (Stycast 2850 FT) in die entsprechenden Bohrungen eingeklebt. Weil die Isolierung der Kupferdrähte nicht ^3He -dicht ist, muss sie an der Einklebestelle entfernt werden. Eine der Bohrungen in der Seitenwand des Silbertöpfchens nimmt die ^3He -Kapillare auf. Die Andere ist blind, dort sind durch ein Missgeschick die Spulendrähte einmal abgerissen.

Der kapazitive Sensor zur Messung des Zelldrucks ist in Abb. 4.8 schematisch gezeichnet. Eine Druckänderung in der Zelle führt zur Änderung der Durchbiegung einer Membran, was wiederum eine Veränderung des Abstands zwischen zwei CuBe-Kondensatorplatten und damit eine Kapazitätsänderung zur Folge hat. Der Plattenabstand ist so gewählt, dass der Kondensator im relevanten Druckbereich von

	Spule	Sinter		Silberstift	
Länge	9.2 mm	Korngröße	700 Å	Durchm.	1.5 mm
Windungen	133	Füllfaktor	50%	Länge	12.5 mm
Durchm.	4.0 mm	Dicke	1.1 mm	Gewinde	2 mm, M1.4
Cu-Draht	Ø 70 µm	Höhe	10.0 mm	Bohrung	Ø 0.6 mm

Tabelle 4.2: Daten der ^3He -NMR-Spule und des Spulenkörpers.

0 – 60 bar im Vakuum und bei Temperaturen unter 4 K eine Kapazität von etwa 13 – 17.5 pF hat, d.h. dass weder der Messbereich der Kapazitätsmessbrücke von 20 pF überschritten wird, noch dass sich die Platten in diesem Druckbereich bereits berühren. Nach Schuh [24], [15] gilt für die Abhängigkeit des Drucks P von der Kapazität C_{PK} des Plattenkondensators

$$P(C) = P_{\text{KS}} - \frac{D}{C_{\text{PK}}}. \quad (4.1)$$

Dabei ist P_{KS} der Kurzschlussdruck des Kondensators und D eine material- und geometrieabhängige Konstante. Da die verwendeten Koaxialkabel ja nur eine Kapazität gegen die Masse besitzen, beschränkt sich die Leitungskapazität $C_{\text{L}} = C - C_{\text{PK}}$ (Parallelschaltung) der Zuleitungen auf den ungeschirmten Bereich (wenige cm) in der Nähe der Zelle. Dadurch ergibt sich

$$P(C) = P_{\text{KS}} - \frac{D}{C - C_{\text{L}}}. \quad (4.2)$$

P_{KS} , C_{L} und D können experimentell aus den Druckeichungsdaten bestimmt werden (Abschn. 5.2). Die Kapazität C misst man mit einer automatischen Kapazitätsmessbrücke (Andeen-Hagerlin 2500A, Abb 4.1).

Für die Empfindlichkeit dieser Druckmessmethode findet man durch Differentiation von Gl. 4.2

$$\Delta P = \frac{D}{(C - C_{\text{L}})^2} \cdot \Delta C. \quad (4.3)$$

Dies ergibt wegen der Genauigkeit $\Delta C = 10^{-4}$ pF der Messbrücke eine sehr hohe Sensitivität (siehe Abschn. 5.2).

Weitere Kenngrößen des Drucksensors sind der Plattenabstand ℓ_0 bei entspann-

ter Membran und die Auslenkung pro Druck F der Membran. Sie können aus den Fitparametern der Eichkurve und der Kapazitätsformel für den Plattenkondensator bestimmt werden. Weil außerhalb der Zelle zum Zeitpunkt der Druckeichung Vakuum herrscht ist die Membran bei $P = 0$ entspannt. Daraus folgt bei gegebener Plattenfläche A des Kondensators

$$\ell_0 = \frac{\epsilon_0 A P_{\text{KS}}}{D}. \quad (4.4)$$

Beim Kurzschlussdruck muss die Auslenkung der Membran dann gerade dem Plattenabstand bei entspannter Membran entsprechen, es gilt also

$$F = \frac{P_{\text{KS}}}{\ell_0}. \quad (4.5)$$

Die thermische Ankopplung der Zelle an die Kernstufe erfolgt über eine Silberstange. (Abben. 4.3, 4.11). Diese Stange besteht aus einem dicken und einem dünnen Stab, die entlang ihrer Längsachse ineinandergeschraubt und dann bei ca. 790 °C getempert werden. Anschließend wird das obere, dicke Ende mittels einer konischen Quetschverbindung an der Kernstufe befestigt. Die Zelle ist an das untere Ende der Stange geschraubt. Der zylinderförmige Stab ist dort abgeflacht, damit die Kontaktfläche möglichst groß wird. Außerdem ist er nach außen gebogen, damit die Zelle im Strahlungsschild zentriert hängt. Einen möglichen thermischen Kurzschluss durch metallische Berührung des Strahlungsschildes verhindern in den Schild eingeklebte Zellulosestreifen. An der Stelle, wo die NMR-Drähte aus dem Zellboden kommen, ist eine Vertiefung in die Ag-Stange gefeilt. Die Orientierung der Zelle ist so, dass das B_1 -Feld der Spule senkrecht auf dem B_0 -Feld des 8 T-Magneten steht.

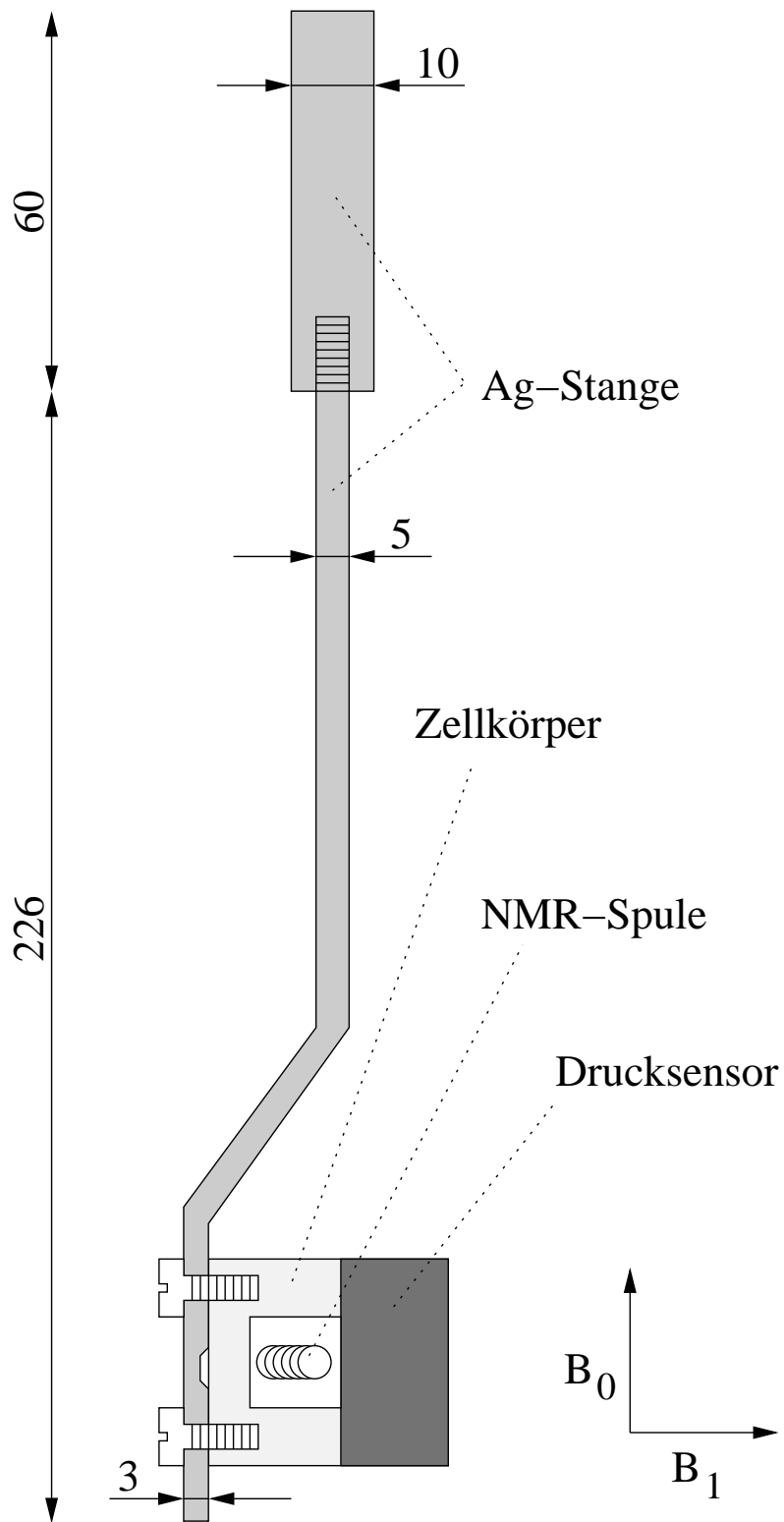


Abbildung 4.11: Schematische Darstellung der thermischen Ankopplung der Zelle an die Kernstufe (Maße in mm).

Kapitel 5

Durchführung der Experimente

5.1 Vorbereitung

Vor Beginn der ersten Messung mussten einige der in Kapitel 4 beschriebenen Aufbauten durchgeführt werden. Zunächst wurde das bereits vorhandene Gashandlingssystem um die Ventile V12, V13 und V14 erweitert und somit den speziellen Bedürfnissen dieses Experiments angepasst (Abb. 4.7). Es folgen ausführliche Lecktests einem Druck von bis zu 50 *bar*. Der Überdrucklecktest wird dadurch erschwert, dass kein ^4He verwendet werden darf, da es die Oberflächen in den dünnen Kapillaren kontaminieren würde. Deswegen verwendet man Argon und beobachtet den Druckabfall über einige Tage hinweg. Trotz gründlicher Reparatur blieb ein Leckrate von etwa $5 \cdot 10^{-4}$ *bar/h* bezogen auf das Volumen zwischen V1, V2 und V4 (etwa 10 cm^3). Diese ist wohl auf Diffusion durch die Wände der Quarzzelle des Diptrons zurückzuführen. Bei Vergrößerung des Volumens durch Hinzunahme des Hochdruckreinigers bzw. des Dipsticks (je ca. 100 cm^3) war der Druckabfall auf einer Zeitskala von Tagen nicht mehr von thermischen Druckschwankungen zu unterscheiden.

Als nächstes wurde die Zelle hergestellt. In das Silbertöpfchen werden die acht äußeren Stifte geschraubt und das Ganze dann bei ca. 790 °C getempert. Dann klebt man mit blauem Stycast die Kapillare in die dafür vorgesehene Bohrung ein. Danach wird der Zellsinter durch kaltes Pressen des vorgesinterten Silberpulvers bei ca. 400 *bar* hergestellt. Der Hohlraum für die NMR-Spule entsteht durch Einsetzen eines Messingzylinders als Platzhalter. Alle bewegliche Teile (Stempel, Platzhalter) werden mit Teflonspray eingesprüht, damit bei ihrer Entfernung keine Risse zwischen Sinter und Ag-Oberfläche entstehen. Das Sintern des Spulenkörpers auf den Spulienstift erfolgt analog. Mit einer 12.5 μm -Kaptonfolie als Abstandshalter dazwischen

wird die NMR-Spule mit Hilfe einer Wickelmaschine auf den Spulenkörper gewickelt. Dann werden Kaptonfolie und Spule mit GE verklebt. Dabei ist besonders darauf zu achten, dass kein GE in den Sinter gelangt. Nach dem festen Einschrauben der Spule in das Töpfchen werden die NMR-Drähte durch die Bohrung im Spulenstift gefädelt und an ihrem Austrittsort am Zellboden mit blauem Stycast eingeklebt. An dieser Stelle müssen, sie wie in Abschnitt 4.5 erklärt, abisoliert sein. Natürlich dürfen sie auch weder untereinander noch mit der Zelle einen elektrischen Kontakt haben!

Nun kann der kapazitive Drucksensor, der gleichzeitig den Zelldeckel darstellt, aufgesetzt werden. Als Dichtung fungiert ein Indium-Ring. Zur Verschraubung werden wegen der höheren Belastbarkeit sechs V2A-Schrauben verwendet. Weil V2A jedoch leicht magnetisch ist, werden die Schrauben nach dem Festquetschen des Indiumrings Stück für Stück durch Messingschrauben ersetzt.

Anschließend werden die ^3He -Kapillaren und die in Abschnitt 4.1 beschriebenen thermischen Abfangungen hergestellt, leckgetestet und in das Kühlsystem eingebaut. Dabei arbeitet man sich ausgehend vom Gashandlingssystem von oben nach unten durch das Kühlsystem vor. Nach jedem Schritt wird das Gesamtsystem mit Argon auf Durchgang geprüft. Nach Anschluss der Zelle wird das gesamte Leitungssystem noch mehrmals mit Argon gespült und dann das Argon sorgfältig herausgepumpt.

Vor Beginn der Messungen mussten noch die Messprogramme geschrieben werden. Die vorhandenen Programme waren leider zum Einen wenig flexibel und zum Anderen unübersichtlich geschrieben, so dass vollständig neue Programme erstellt werden mussten. Dies bedeutete etwa 3 Wochen intensives Programmieren. Die beiden Wichtigsten, FAHDIPR7 und FPULS2K sind in Anh. A genauer beschrieben.

5.2 Druckeichung

Der kapazitive Drucksensor wird gegen das Diptron im Gashandlingssystem geeicht. Dies muss geschehen, solange das ^3He in der Zelle und den Kapillaren noch flüssig ist, denn sobald die Kapillare an einer Stelle zufriert, kann der Druck von außen nicht mehr variiert werden. Die Eichung ist von der Eichtemperatur abhängig, weil viele Materialkonstanten (z.B. Elastizitätsmodul der Membran, Ausdehnungskonstanten der Platten etc.) mit der Temperatur variieren. Schuh [24] stellt bei der Druckeichung einer Schmelzdruckthermometerzelle mit ähnlichem Design keine messbaren Unterschiede zwischen einer Eichung bei 70 mK und 1.5 K fest. Weil eine Eichung

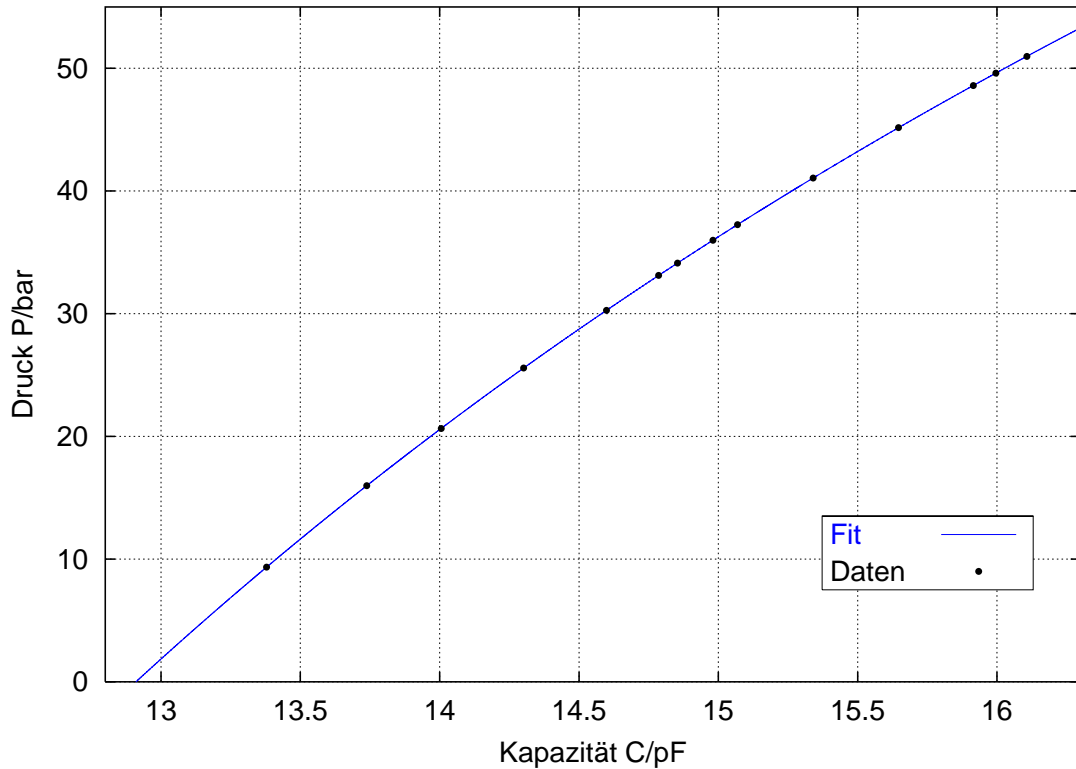


Abbildung 5.1: Eichkurve für den kapazitiven Drucksensor nach Gl. 5.1.

bei 1.5K eine Unterbrechung des Mischkühlers erfordert, wird daher in dieser Arbeit ein ausreichend flaches Verhalten von Materialkonstanten bis zu 4.2K angenommen und bei dieser Temperatur geeicht.

Für die Eichung wird nun im relevanten Druckbereich von 9–50bar die Kapazität in Abhängigkeit des Diptrondrucks gemessen. In die gefundenen Wertepaare wird dann die Funktion aus Gleichung 4.2 gefittet (Abb. 5.1). Die Druckeichung für die in Kap. 6 gezeigten Messergebnisse ist

$$P(C) = 217.39 \text{ bar} - \frac{2268.8 \text{ bar pF}}{C - 2.4733 \text{ pF}}. \quad (5.1)$$

Der statistische Fehler (mittlere quadratische Abweichung) des Fits ist trotz der wenigen Eichpunkte ($n = 14$) und der begrenzten Genauigkeit des Diptrons ($\Delta P_{\text{Diptron}} = \pm 0.01 \text{ bar}$) sehr gering, er beträgt

$$\Delta P_{\text{Fit}} = \pm 3.24 \cdot 10^{-3} \text{ bar}. \quad (5.2)$$

Der aus der Kapazitätsmessung resultierende Fehler der Druckmessung (Gl. 4.3) ist

für relevante Kapazitäten von $C \approx 14.86$ pF

$$\Delta P_{\text{Kap}} = \frac{2268.8 \text{ bar pF}}{(14.86 \text{ pF} - 2.4733 \text{ pF})^2} 10^{-4} \text{ pF} = 1.48 \cdot 10^{-3} \text{ bar}. \quad (5.3)$$

Damit wird der Gesamtfehler eines aus einem gemessenen Kapazitätswert berechneten Drucks zu

$$\Delta P_{\text{Ges}} = \Delta P_{\text{Kap}} + \Delta P_{\text{Fit}} = 4.72 \cdot 10^{-3} \text{ bar} \quad \text{für } C \approx 14.86 \text{ pF}. \quad (5.4)$$

Schließlich erhält man den Wert der Leitungskapazität direkt aus Gl. 5.1, die Werte für Plattenabstand bei entspannter Membran und Auslenkung pro Druck nach aus Gl. 4.4 bzw. nach Gl. 4.5:

$$\begin{aligned} C_L &= (2.47 \pm 0.01) \text{ pF} \\ \ell_0 &= (96 \pm 3) \mu\text{m} \\ F &= (0.44 \pm 0.02) \mu\text{m}/\text{bar} \end{aligned} \quad (5.5)$$

5.3 Einstellen des Zelldrucks

Da während des Einkondensierens des Gemischs irgendwann durch Blockbildung in der Kapillare der Zelldruck von außen nicht mehr beeinflussbar ist, muss er vor dem Einkondensieren gesetzt werden. Durch die thermische Kontraktion der Flüssigkeit und die Bildung des Festkörpers reduziert sich beim Abkühlen dann das Volumen des ^3He . Der resultierende Druckabfall beträgt etwa 20 bar und muss in den Startdruck mit einberechnet werden. Der erforderliche Anfangsdruck ist etwa 58 – 60 bar, gemessen mit dem Manometer P2 (Abb. 4.7). Nach dem Einkondensieren ist die Kapazität und damit der Druck sehr stabil ($\Delta C = 10^{-4}$ pF in Gl. 5.3). Nur bei Phasenübergängen (fest \leftrightarrow flüssig, paramagnetisch \leftrightarrow U2D2) stellt man noch eine Druckänderung fest.

Der Kondensationsvorgang ist in Abb. 5.2 dargestellt. Zunächst läuft man durch die Nassdampfphase bis zur Schmelzkurve. Dort beginnt die Bildung von Festkörper und der Druck fällt steil entlang der Schmelzkurve ab. Nachdem alles ^3He verfestigt ist, verläßt man die Schmelzkurve in den „all solid“-Bereich, der Druck bleibt nun auch bei Temperaturenniedrigung quasi konstant. War der Anfangsdruck zu niedrig, so überquert man die Schmelzdruckkurve bei kleinen Temperaturen noch einmal und es tritt eine (zumindest teilweise) Verflüssigung ein (gestrichelter Weg in Abb. 5.2 links).

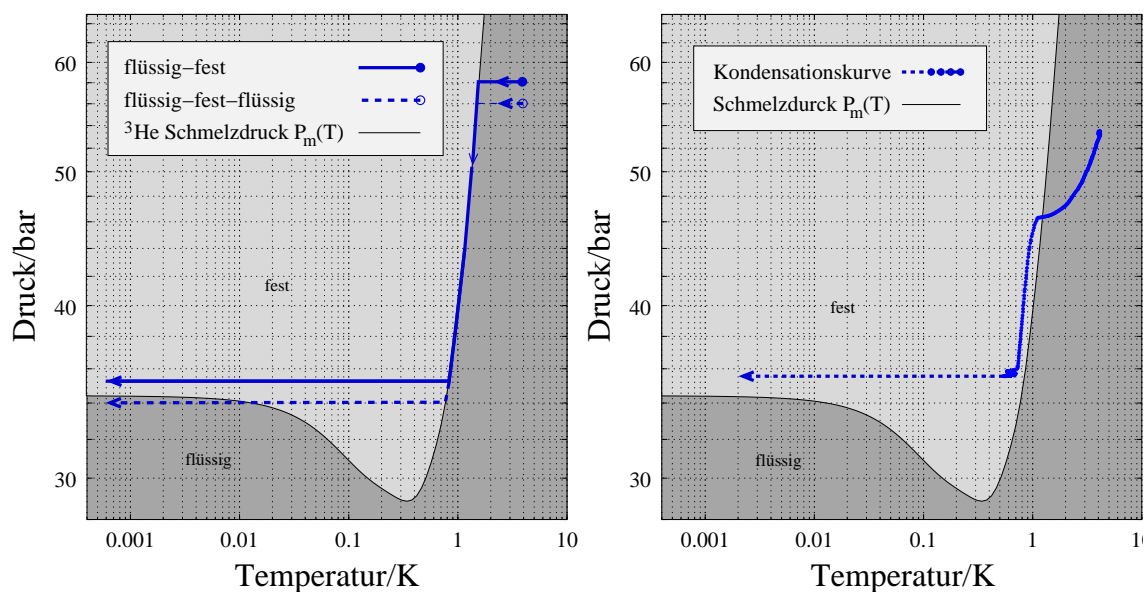


Abbildung 5.2: Schematische (links) und gemessene (rechts) Kondensationskurve von ^3He . Die Zickzack-Bewegung kurz nach dem Verlassen der Schmelzdruckkurve kommt daher, dass der Block in der Kapillare mehrmals sprunghaft nach unten rutscht.

Die experimentelle Kondensationskurve (Abb. 5.2 rechts) stammt aus einer Probemessung und endet bei einem Druck $P_{\text{final}} > P_{m,0\text{K}}$. Die Zickzack-Bewegung kurz nach dem Verlassen der Schmelzdruckkurve kommt daher, dass der Block in der Kapillare mehrmals sprunghaft nach unten rutscht. Außerdem fällt auf, dass der steile Abfall des Kondensationsdrucks zwar parallel, aber versetzt zur Schmelzdruckkurve verläuft. Dies ist auf einen Thermometriefehler zurückzuführen, da die Temperatur an der Kernstufe, also an einem besonders kalten Bereich der gesamten Drucksäule in der Kapillare gemessen wird.

5.4 NMR-Messungen

Die einzelnen NMR-Schüsse selbst werden automatisch vom Programm FPULS2K (siehe Anhang A.2) erledigt. Der Weg vom Aussenden des Signals bis zum Auslesen des resultierenden Amplituden-Frequenz-Spektrums ist in Abschnitt 4.3 dargelegt. Im Folgenden wird dagegen der typische Ablauf einer Messreihe beschrieben.

Zunächst setzt man bei Mischkammertemperatur die Felder im 6 T- und im 8 T-Magneten. Dann müssen die Peaks der zu messenden Elemente gefunden und eindeutig identifiziert werden. Um sicherzustellen, dass man keinem Artefakt auf-

Element	Spin	γ [Hz/G]	κ [msK]
^3He	1/2	3243.592	—
^{63}Cu	3/2	1129.812	1190
^{65}Cu	3/2	1210.351	1090
^1H	1/2	4257.711	—
^{107}Ag	1/2	173.305	1200
^{109}Ag	1/2	199.150	9600

Tabelle 5.1: NMR-Daten einiger Isotope.

sitzt, sucht man die relativen Abstände verschiedener bekannter Linien ($\omega_{0,a}$, $\omega_{0,b}$) zueinander. Im gleichen Magnetfeld ist dann der Quotient der Resonanzfrequenzen gleich

$$R_{a,b} \equiv \frac{\omega_{0,a}}{\omega_{0,b}} = \frac{\gamma_a}{\gamma_b}. \quad (5.6)$$

Da die gyromagnetischen Verhältnisse γ sehr genau bekannte Materialkonstanten sind (Tab. 5.1), müssen sich ausgehend von einer Linie alle anderen (im System vorhandenen) vorhersagen lassen. Kupfer hat eine charakteristische Doppellinie (^{63}Cu und ^{65}Cu) mit jeweils sehr breiten Peaks. ^3He hingegen weist in der paramagnetischen Phase lediglich einen schmalen Einzelpeak auf. Als Referenzlinien kann man hier jedoch das Signal des Kupferdrahts der NMR-Spule verwenden.

Anschließend sucht man den 90° -Puls in Abhängigkeit von der Anzahl N der Wellenzüge und der Amplitude des ausgesendeten Sinus-Bursts. Die Resonanzamplitude wird dort bei abgesehen von N unveränderten Bedingungen maximal. In der Praxis kann man das folgende Minimum (180° -Puls, d.h. die Spins stehen antiparallel zu \mathbf{B}_0) besser bestimmen, der 90° -Puls ist dann $N_{90} = N_{180}/2$.

Nun wird ein Feld von 5.5 T in den 6 T-Magneten gefahren. Dabei erwärmt sich die Kernstufe. Bei leitendem Wärmeschalter kühlt nun der Entmischungskryostat die magnetisierte Kernstufe etwa 3 – 4 Tage lang vor. In dieser Zeit erreicht die Kernstufe noch nicht ganz die Mischkammertemperatur. Nun beginnt die Entmagnetisierung. Sie dauert insgesamt etwas weniger als 1000 min. Bei Erreichen der Mischkammertemperatur trennt man durch Ausschalten des Wärmeschalters nach ca. 600 min die Kernstufe thermisch vom Mischkühler. Den genauen Zeitpunkt bestimmt man mit einem Kohlewiderstand (R7 in Abb. 4.3).

Das Endfeld ist durch die gewünschte Position der Kupferlinie bestimmt. In dieser Arbeit ist $\omega_{0,\text{Cu}} = 501$ kHz und damit $B_{\text{final,Cu}} = 44$ mT. Das Feld im 8 T-Magneten bleibt unverändert, aus $\omega_{0,\text{He}} = 758$ kHz folgt $B_{\text{final,He}} = 23$ mT.

Nun wird das NMR-Programm gestartet. Zwischen zwei Schüssen auf das gleiche Isotop muss man etwa $5T_1$ warten, bis sich die Magnetisierung wieder vollständig erholt hat. Die Spin-Gitter-Relaxationszeit T_1 erhält man für Metalle aus der Korringakonstante κ (Tab. 5.1) über das Korringa-Gesetz

$$\kappa = T_1 T. \quad (5.7)$$

Für Kupfer ist dieser Zeitabstand einschließlich der thermischen Relaxationszeit ca. 4 h bei 0.4 mK. Für das Nichtmetall ^3He beträgt die experimentell ermittelte Wartezeit ebenfalls etwa 4 h. Bei höheren Temperaturen verkürzt sich die Wartezeit zwischen den Schüssen.

Bei den ersten Messreihen wurde immer noch auf die Frequenz des Kupfers des ^3He -Spulendrahts geschossen. Die auf so einen „Cu-Wire-Schuss“ folgenden ^3He -Peaks zeigten allerdings bis zu 10 h danach noch unterdrückte Amplituden (siehe auch Kap. 6). Deshalb sollten Cu-Wire-Schüsse nur zur Identifikation der ^3He -Linie nach dem Setzen des Magnetfeldes im 8 T-Magneten erfolgen!

Nachdem die Kernstufe ca. 1.5 mK erreicht hat, wird sie geheizt. Ab ca. 15 mK kann man mittels des Kohlewiderstands R7 an der Kernstufe (Abb. 4.3) die NMR-Ergebnisse eichen. Wenn während einer Messreihe das Signal zu stark oder zu schwach wird, müssen die Einstellungen der NMR-Schüsse entsprechend angepasst werden. Bei einer solchen sogenannten Umeichung ist zu beachten, dass nicht nur der ADC des Oszilloskops, sondern auch der Matec-Verstärker überlastet sein kann. Die Umeichungen müssen bei der Datenauswertung entsprechend berücksichtigt werden (Abschn. 6.2).

Kapitel 6

Ergebnisse und Diskussion

6.1 Überblick

Festes ^3He wurde unter die Néel-Temperatur $T_N = 0.9$ mK gekühlt und die magnetisch geordnete Niederfeldphase erreicht. Mit NMR-Messungen wurden zwei Phasenübergänge beobachtet, von denen der eine wahrscheinlich fest-flüssig und der andere kernmagnetisch ist. Die Temperatur der Kernstufe wurde durch NMR-Messungen an Kupfer bestimmt. Sie stimmte nach einer Thermalisierungszeit von 20 – 50 h im Rahmen der Messgenauigkeit mit der Temperatur des ^3He überein.

Anzumerken ist noch, dass alleine Aufbau, Lecktest und das Schreiben der Messprogramme etwa 7 Monate Arbeit in Anspruch genommen haben. Danach wurden vier Messreihen durchgeführt, von denen jede etwa 3 – 4 Wochen dauerte. Experimentelle Probleme waren defekte Wärmeschalter, Schwierigkeiten mit der NMR-Messelektronik und störender Noise einiger Messgeräte. Besonders unerwartet waren die verheerenden Auswirkungen des Versuchs, mit dem Kupfer-NMR-Signal des Spulendrahts in der Zelle zu thermometrieren („Cu-Wire-Schüsse“). Als Resultat verhinderte eine thermische Überhitzung des ^3He das Erzielen von ausreichend tiefen Temperaturen, um die magnetisch geordnete Phase zu erreichen. Eine Verbesserung der thermischen Ankopplung von Zelle und Draht an die Kernstufe lösten dieses Problem nicht. Trotz dieser Rückschläge und eines immer noch leicht defekten Wärmeschalters gelang es schließlich doch noch, das ^3He unter die kritische Temperatur von 0.9 mK zu kühlen und dabei das gemessene Magnetisierungsdiagramm schlüssig zu erklären.

In den folgenden Abschnitten wird zunächst ein besonders wichtiger Schritt der Auswertung beschrieben, die sogenannte Umeichung. Auf dieser Grundlage werden

dann die Verhältnisse in der Kernstufe und deren Auswirkung auf das dort angebrachte Cu-NMR-Thermometer dargestellt. Es bietet wegen des Ausfalls der Cu-Wire-Thermometrie das einzig verfügbare Maß für die Temperatur des ^3He . Es zeigt sich, dass die Temperatur der Kernstufe einerseits selbstkonsistent und außerdem ab $T > 0.7$ mK auch konsistent mit dem Verhalten der Magnetisierung des ^3He ist. Schließlich werden die Messergebnisse am ^3He selbst vorgestellt und ausführlich diskutiert.

6.2 Umeichpunkte in den Magnetisierungskurven

Ein Umeichpunkt ist ein Punkt, an dem die Parameter der NMR-Messung geändert worden sind. Auf der Sendeseite sind dies die Anzahl der Wellenzüge N , die Amplitude (Level L) und die Frequenz f_{in} des Tip-Pulses, auf der Empfangsseite der ADC und der trigger delay des Oszilloskops (siehe auch Abschn. 4.3). Die Aufwärmkurve hat an einem Umeichpunkt eine Unstetigkeit (Sprung).

Die Amplitude des gemessenen Resonanzsignals sollte für gesendete Bursts etwa linear von N und L abhängen, sofern diese nicht zu groß sind. Wegen nichtlinearer Veränderungen (z.B. im Diodenkästchen) trifft dies allerdings für den Level nicht zu. Änderungen von N oder des ADC hingegen haben sich für die Einstellungen der hier diskutierten Messungen als linear erwiesen.

Um eine stetige Magnetisierungskurve zu erreichen, werden deren einzelne Segmente an Umeichpunkten auf Basis der Messdaten aneinander angeschlossen. In Bereichen, in denen das Wärmeleck $\dot{Q}(t) \equiv \dot{Q}_1$ etwa konstant ist und außerdem die spezifische Wärme näherungsweise mit $C \propto T^{-2}$ variiert, ist die Magnetisierung $M(t)$ eines Paramagneten linear von der Zeit t abhängig:

$$\dot{Q}(t) = C(T) \frac{dT}{dt} = \frac{1}{T^2} \frac{dT}{dt} \Rightarrow T(t) \propto t^{-1} \Rightarrow M(t) \propto t. \quad (6.1)$$

Deswegen werden Ausgleichsgeraden durch die beiden Kurvensegmente gelegt und diese aneinander angeschlossen. Die Anzahl der in die Ausgleichsgerade einbezogenen Punkte stellt einen Kompromiss aus der Erfüllung obiger Voraussetzungen und einer sinnvollen Statistik des Fits dar.

Bei einzelnen Umeichpunkten und bei Punkten, die die obigen Voraussetzungen überhaupt nicht erfüllen, muss man den theoretischen Umeichfaktor verwenden. In diesem Fall werden Punkte mit starker Veränderung des Levels als nicht sinnvoll

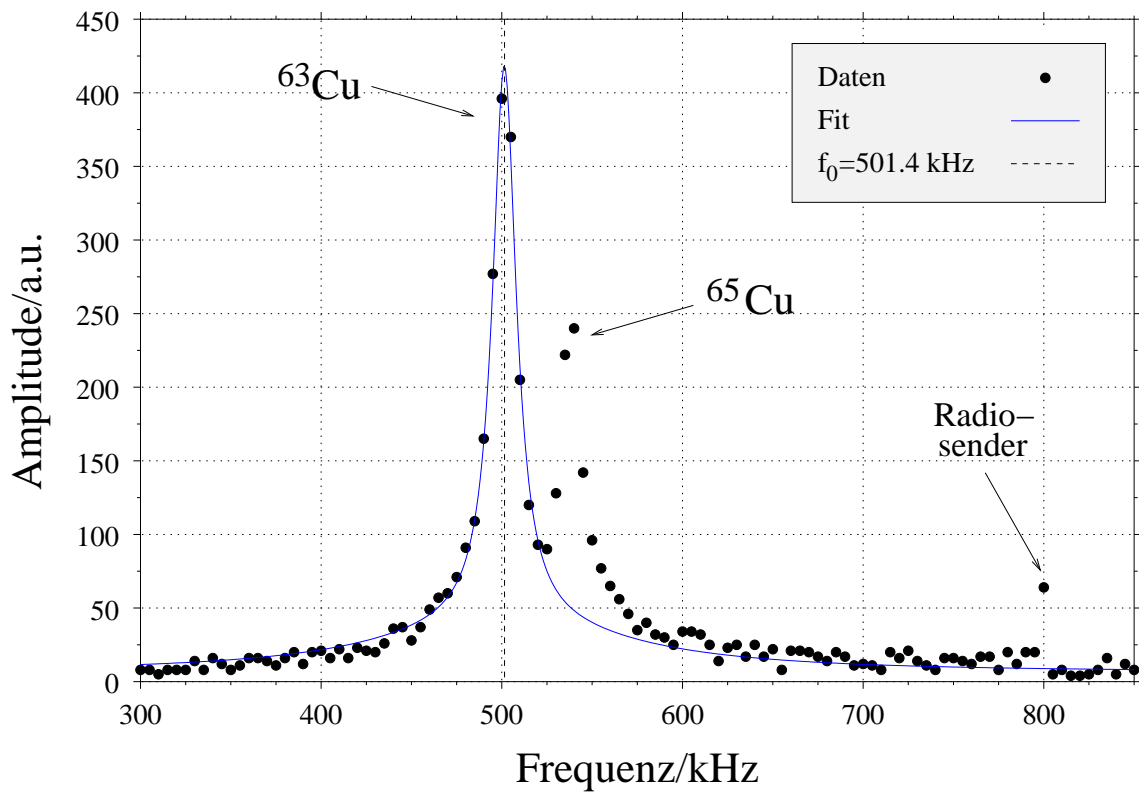


Abbildung 6.1: Cu-NMR-Spektrum bei $T = 0.7$ mK. Die blaue Linie ist das Ergebnis eines Fits nach Abschn. A.3.

uneichbar ignoriert.

6.3 Thermometrie der Kernstufe

Die Temperatur der Kernstufe wird über NMR an einem Kupferzylinder bestimmt (Abschn. 4.3, Abben. 4.3, 4.6). Ein typisches Spektrum zeigt Abb. 6.1. In dem hier betrachteten Temperaturbereich ist Kupfer kernparamagnetisch, d.h. es gilt das Curiegesetz $M \propto T^{-1}$. Die Curiekonstante in den Einheiten der Messung erhält man durch mehrere Eichschüsse gegen ein Kohlewiderstandsthermometer (R7) bei ca. 10 mK.

Die Aufwärmkurve (Magnetisierung gegen Zeit und Temperatur gegen Zeit) ist in Abb. 6.2 zu sehen. Die Curiekonstante beträgt 27.36 ± 0.47 in den Einheiten von Abb. 6.2. Die statistischen Fehlerbalken aus den Fits der Spektren sind bei beiden Kurven kleiner als die Punktgröße. Durch die Umeichung haben die grünen und die blauen Punkte jeweils einen relativen statistischen Fehler von 23%. Dieser re-

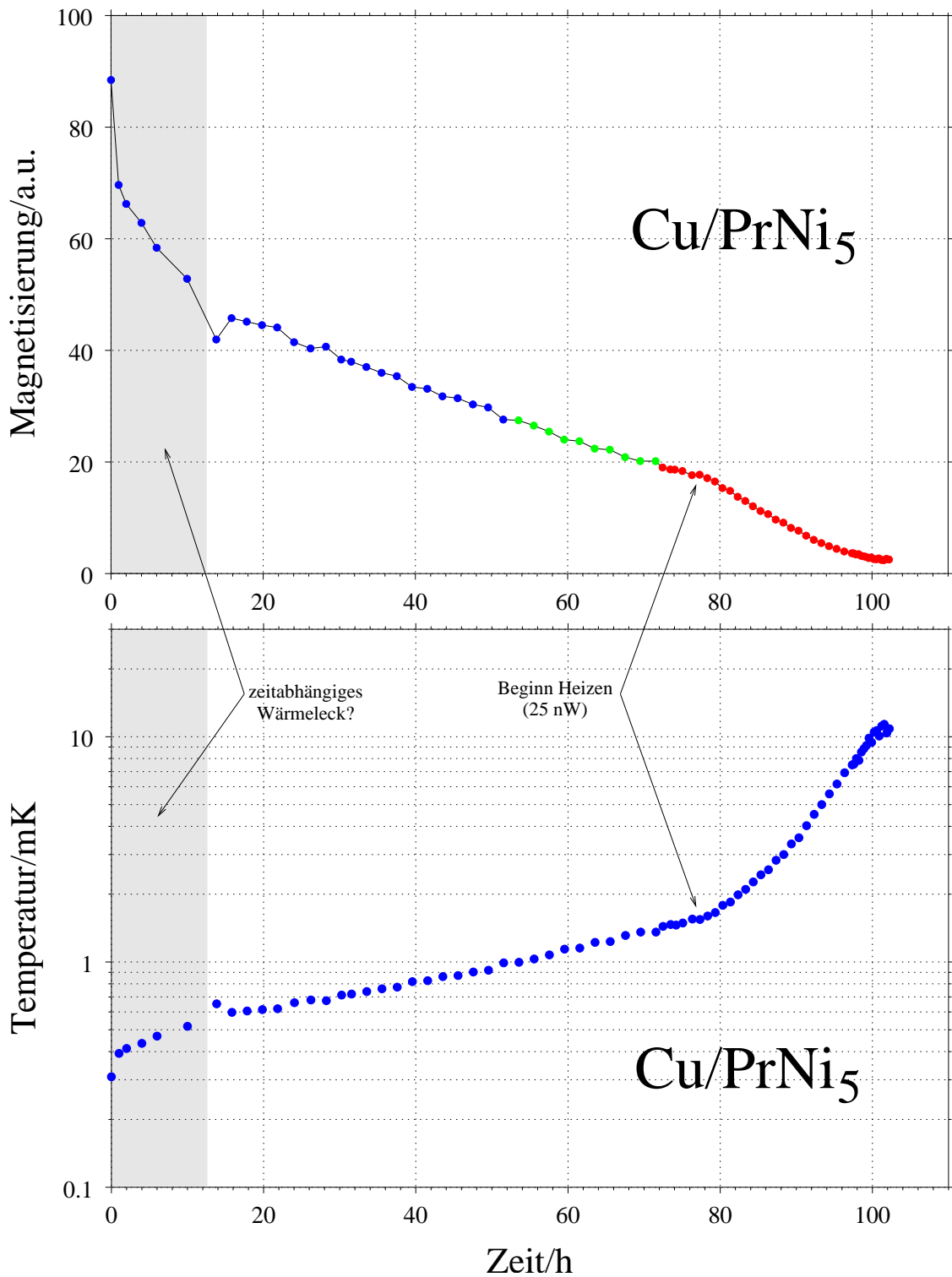


Abbildung 6.2: Aufwärmkurve der PrNi₅-Kernstufe. In der Magnetisierungs-Zeit-Kurve haben Punkte mit gleicher Farbe die gleiche Eichung.

sultiert größtenteils aus der Umeichung von der roten auf die grüne Kurve (22.3%), da vor dem Heizbeginn auf der roten Kurve nur wenige Messpunkte vorhanden sind und diese wegen zu wenig Wartezeit zwischen den Schüssen sehr stark fluktuieren. Ein Vergleich mit der Magnetisierung des ^3He erlaubt es jedoch, den Fehler auf 7% einzugrenzen. Dieser Sachverhalt ist in Abschn. 6.5 ausführlicher dargestellt. Bei Betrachtung der relativen Temperaturabstände von Punkten innerhalb der blauen und grünen Kurve ist dieser Fehler jedoch irrelevant, da er jeden Punkt um den gleichen Betrag verschiebt. In diesem Fall dominiert der relative Fehler der Temperatureichung, er liegt bei ca. 2%.

Die gemessene Temperatur der Kernstufe steigt zunächst von $T(t = 0) = 0.31\text{mK}$ innerhalb der ersten Stunde auf 0.39mK an. Danach nähert sich der Temperaturanstieg innerhalb von 15 h (grau schattierter Bereich in Abb. 6.2) einer konstanten Aufwärmrate. Das gleiche Verhalten mit einer ähnlichen Zeitskala zeigt sich auch in einer neueren Messung von C. Millán Chacartegui, die aber leider nicht mehr rechtzeitig zum Abgabetermin dieser Arbeit präsentationsgerecht ausgewertet werden konnte. Nach dem Einschalten der Heizung bei $t = 77\text{h}$ steigt die Aufwärmrate sprunghaft an, die Temperatur-Zeit-Kurve knickt deutlich sichtbar nach oben ab.

Eine mögliche Erklärung des Verhaltens der Aufwärmkurve in den ersten 15 h bietet die Annahme eines zeitabhängigen Wärmelecks. Dies könnte z.B. durch die Kaptonfolie oder das ^3He im sinterfreien Zellvolumen (etwa 1% des gesamten ^3He in der Zelle) verursacht werden. Dagegen spricht jedoch eine neuere Messung ohne fest-flüssig-Übergang. Man beobachtet wieder einen starken Temperaturanstieg in den ersten 8 h, die Zeit bis zum Erreichen des Magnetisierungsminimums betrug jedoch ca. 50 h. Eine bessere Erklärung bietet die Tatsache, dass man eigentlich die Kerntemperatur des Kupfers misst. Dieses wird aber ebenfalls entmagnetisiert. Seine Ordnungstemperatur liegt deutlich unter der des PrNi_5 (Van-Fleck-Paramagnet, $T_c \approx 0.55\text{mK}$ im angelegten Feld von $B = 44\text{mT}$ [25]). Die relativ lange Spingitter-Relaxationszeit T_1 von Kupfer (Tab. 5.1) verhindert nun, dass man bereits beim ersten Schuss die Temperatur des PrNi_5 sieht. Die Zeitskala für die Spingitter-Relaxation ist nach Gl. 5.7 etwa 7 h, die Differenz zu den beobachteten 15 h kann als Auswirkung des kleinen Temperaturpeaks am Ende des grauschattierten Bereichs bei $t = 16\text{h}$ interpretiert werden. Er wird in Abschn. 6.5 diskutiert.

Die Endtemperatur des PrNi_5 der Kernstufe kann man demnach durch die Kupfertemperatur nach ca. 7h abschätzen, sie lag bei $T_{\text{KS,min}} = 0.47\text{mK}$. Dieser Wert ist bei guten Vorkühlbedingungen auch nicht unrealistisch. Eine Berücksichtigung des

relativen Fehlers der Temperaturmessung widerspricht der Argumentation in diesem Abschnitt qualitativ nicht.

6.4 Wärmeleck auf die Kernstufe

Um die Aufwärmkurve des PrNi_5 zu überprüfen, wird zuerst das Wärmeleck auf zwei verschiedene Arten berechnet und die Ergebnisse miteinander verglichen. Abschließend wird versucht, aus den ermittelten Daten die Temperaturabhängigkeit der spezifischen Wärme von PrNi_5 wenigstens qualitativ zu rekonstruieren. Alle diese Crosschecks ergeben ein konsistentes Bild, was für die Zuverlässigkeit der Thermometrie der Kernstufe spricht.

Das Wärmeleck $\dot{Q}(T)$ auf die Kernstufe kann ausgedrückt werden durch einen konstanten Anteil \dot{Q}_0 und einen Temperaturabhängigen, verursacht durch die Restwärmeleitung des zu dieser Zeit defekten Wärmeschalters (Wärmeleitfähigkeit $\lambda = aT$):

$$\dot{Q}(T) = \dot{Q}_0 + \lambda T = \dot{Q}_0 + aT\Delta T = \dot{Q}_0 + \lambda\Delta T = \dot{Q}_0 + aT(T_{\text{MK}} - T). \quad (6.2)$$

Unter der Annahme konstanter Mischkammertemperatur T_{MK} erhält man durch Einsetzen von Gl. 6.2 in Gl. 6.1 eine separable Differentialgleichung mit der Lösung

$$t(T) - t_0 = \left[\frac{AT_{\text{MK}}}{2B^2} \ln \frac{X^2}{T^2} - \frac{1}{BT} + \left(\frac{A^2T_{\text{MK}}^2}{2B^2} + \frac{A}{B} \right) \frac{1}{\sqrt{\Delta}} \ln \frac{-2AT + AT_{\text{MK}} - \sqrt{\Delta}}{-2AT + AT_{\text{MK}} + \sqrt{\Delta}} \right]_{T_0}^T. \quad (6.3)$$

Dabei sind

$$B \equiv \frac{\dot{Q}_0}{D}, \quad A \equiv \frac{a}{D}, \quad (6.4)$$

$$X \equiv B + AT_{\text{MK}}T - AT^2, \quad \Delta \equiv 4AB + A^2T_{\text{MK}}^2 \geq 0.$$

Die Determinante Δ ist immer positiv, da nur $\dot{Q}_0 > 0$, $a > 0$ und $T_{\text{MK}} > 0$ physikalisch sinnvoll sind. Ein negatives Wärmeleck ist dann immer noch für $T_{\text{MK}} < T$ möglich. $D > 0$ ist der Proportionalitätsfaktor der Temperaturabhängigkeit der spezifischen Wärme.

Nach Gl. 6.3 wird nun die Aufwärmkurve der Kernstufe (Abb. 6.2) gefittet, freie

Parameter sind A , B und T_{MK} . Der Skalierungsfaktor D wird eliminiert, indem zwei Parametersätze für Kurvenabschnitte mit verschiedenen Heizleistungen verglichen werden (hier: $Q_{\text{Heiz}} = \{0 \text{ nW}, 25 \text{ nW}\}$). Dabei ist wegen der nicht mehr stabilen Mischkammertemperatur bei 25 nW Heizleistung nur noch B aussagekräftig. Mit bekanntem D können a und T_{MK} aus der 0 nW-Kurve bestimmt werden. Man erhält nun

$$\begin{aligned}\dot{Q}_0 &= (7 \pm 4) \text{ nW} \\ a &= (8 \pm 21) \cdot 10^{-3} \text{ JK}^{-2} \quad . \\ T_{\text{MK}} &= (5 \pm 41) \text{ mK}\end{aligned}\tag{6.5}$$

Wegen des einfachen Modells und der schlechten Statistik sind die Fehler sehr groß. Trotzdem stimmen die berechneten Werte gut mit einer vorherigen Abschätzung bei ca. 10 – 20 mK überein. Der trotz geschlossenen Wärmeschalters ungewöhnlich hohe Wert von a ist ein Anzeichen dafür, dass der Wärmeschalter zum Zeitpunkt des Experiments defekt war.

Das Gesamtwärmeleck kann auch alternativ durch numerische Integration von Gleichung 6.1 bestimmt werden. Mit der spezifischen Wärme für PrNi₅ nach Kubota et al. [25] ergibt sich für den 0 nW-Bereich

$$\bar{Q} = \begin{cases} 21 \pm 14 & (0 - 77 \text{ h}) \\ 25 \pm 32 & (0 - 15 \text{ h, schattiert}) \quad . \\ 20 \pm 73 & (15 - 77 \text{ h})\end{cases}\tag{6.6}$$

Dies ist konsistent mit den Resultaten aus Gl. 6.5. Auch bei dieser Rechnung sind jedoch wegen der groben Digitalisierung die Fehlerbalken sehr groß.

Eine weitere Bestätigung der gefundenen Ergebnisse erhält man, wenn man die spezifische Wärme nach Gl. 6.1 numerisch aus den Messwerten und den Ergebnissen aus Gl. 6.5 berechnet. Die resultierende Kurve (Abb. 6.3) zeigt wie erwartet ein Maximum bei ca. 0.6 mK. Das entspricht dem, was man durch Vergleich mit den in Abb. 6.4 dargestellten Messungen von Kubota et al. [25] an PrNi₅ erwartet. Aus denselben Gründen wie bei den vorherigen Ergebnissen stimmt die Form der ermittelten Kurve nur qualitativ, d.h. das Maximum ist erkennbar und befindet sich im Rahmen der Messgenauigkeit an der richtigen Stelle. Unterhalb von ca. 1.5 mK ist die Kurve stark verrauscht. Darüber wird zum Einen die Steigung dT/dt wegen des Heizbeginns größer, und zum Anderen der Zeitabstand zwischen zwei Messpunkten kleiner. Dadurch verbessert sich die numerische Berechnung der Ableitung und

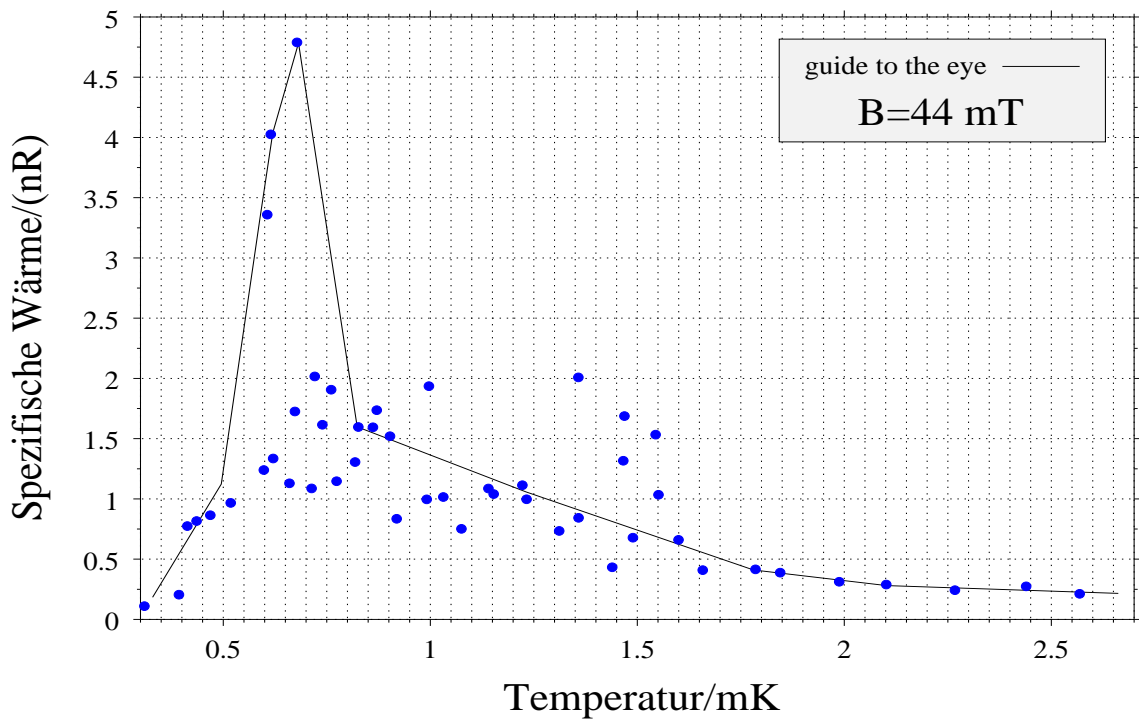


Abbildung 6.3: Gemessene spezifische Wärme des PrNi_5 der Kernstufe. nR ist das Produkt aus Molzahl und Gaskonstante.

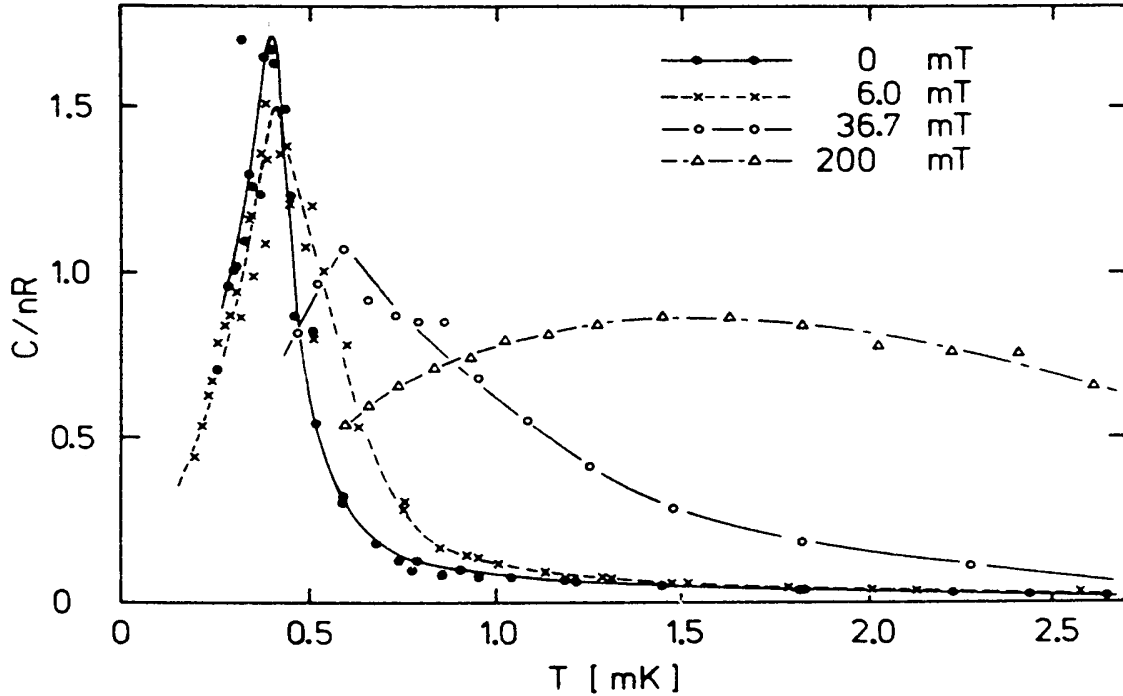


Abbildung 6.4: Spezifische Wärme von PrNi_5 in kleinen Magnetfeldern. Aus Kubota et al. [25].

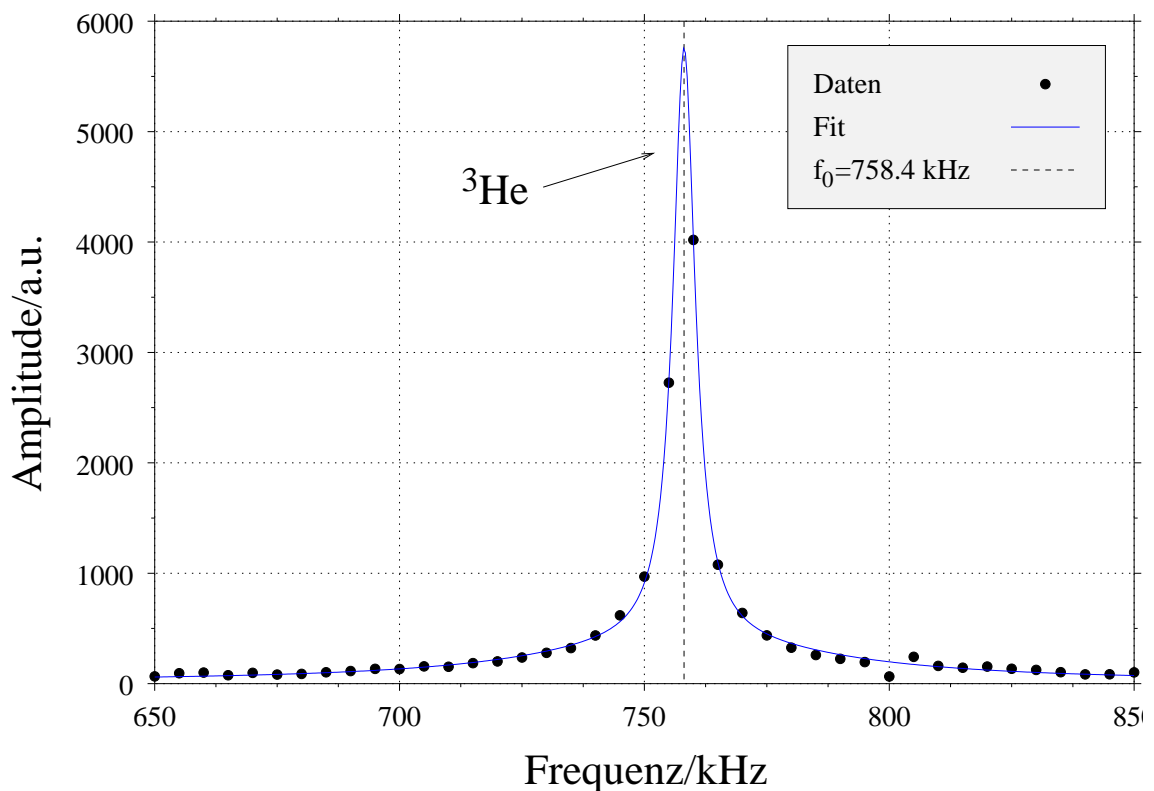


Abbildung 6.5: ^3He -NMR-Spektrum bei $T = 0.7 \text{ mK}$. Die blaue Linie ist das Ergebnis eines Fits nach Abschn. A.3.

der Noise verschwindet von der Kurve. Der Vergleich von Abb. 6.3 mit Abb. 6.4 zeigt allerdings auch, dass andere quantitative Aussagen die Genauigkeit der hier gemachten Messung übersteigen.

6.5 Magnetisierung des festen ^3He

Die Magnetisierung des ^3He wurde ebenfalls mit gepulster NMR bestimmt. Ein typisches Spektrum zeigt Abb. 6.5.

Die Aufwärmkurven für das ^3He sind in Abb. 6.6 und Abb. 6.7 zu sehen. Punkte gleicher Eichung haben dabei die gleiche Farbe. Sie werden im Folgenden über diese Farbe identifiziert. Die verlässlichsten Punkte sind die roten und die dunkelblauen Punkte, weil ihre Einstellungen den gesendeten Burst mit der niedrigsten Intensität ergeben. Am unsichersten sind die hellblauen und cyanfarbenen Punkte. Bei ihnen sind wegen zu hohen Levels auf der Empfangsseite der Matec-Verstärker und/oder der ADC überlastet. Dies führt bei der Fouriertransformation zu einem nicht mehr

exakt lorentzförmigen Peak und zu Verlusten an spektralem Gewicht durch Oberwellen. Diese Punkte können allgemein nur zur Bestätigung der Form der durch die roten Punkte gegebenen Features verwendet werden. Die blauen und grünen Punkte haben eine andere Resonanzfrequenz. Bei der Beurteilung der Graphen wurden die Fehlerbalken immer so interpretiert, dass die Punkte mit großen Fehlerbalken auf ebendiesen so verschoben werden können, dass sie im Trend der Punkte mit den kleinen Fehlerbalken liegen. Soweit nicht anders angegeben, beziehen sich alle Aussagen in diesem Abschnitt auf die Abben. 6.6 und 6.7. An den Kurven sind vier Features besonders auffällig:

- (1) Ein tiefer Einbruch der Magnetisierung auf weniger als 2%, mit dem eine Verringerung der Halbwertsbreite einhergeht (hellgrau schattierter Bereich).
- (2) Im dunkelgrau schattierten Bereich bricht die Magnetisierung um nur etwa 30% ein, Halbwertsbreite und gemessene Resonanzfrequenz durchlaufen jedoch ein Maximum.
- (3) Bei jedem Versuch, das NMR-Signal des Kupferdrahts der ^3He -Spule zu ermitteln („Cu-Wire-Schuss“), bricht das Signal des ^3He deutlich sichtbar ein und braucht bis zu 4 – 8 h um sich wieder zu erholen.
- (4) Rechts des schattierten Bereichs zeigt der Abfall der Magnetisierung paramagnetisches Verhalten.

Die Einbrüche in den schattierten Bereichen sind auf Phasenübergänge zurückzuführen. Bei der Klärung der Frage, ob der Phasenübergang fest-flüssig oder magnetischer Natur ist, kann die Kenntnis des Zelldrucks hilfreich sein. Dieser wurde leider nur zu sehr wenigen Zeitpunkten während der Messung bestimmt. Um den Noise-Eintrag über die Masse auf die Zelle zu reduzieren, wurde nämlich kurz vor Beginn der Entmagnetisierung die digitale Kapazitätsmessbrücke abgeschaltet. Nach Gl. 5.1 beträgt der Zelldruck vor der Entmagnetisierung $P_0 = 34.18$ bar und ist somit deutlich kleiner als das Maximum der ^3He -Schmelzkurve bei $P_{m,0K} = 34.40$ bar. Bei einer Temperatur von 1.4 mK, d.h. 66 h nach Messbeginn, wurde die Kapazitätsmessbrücke wieder eingeschaltet. Nach diesem Zeitpunkt herrscht bis zum Aufwärmen des Mischkühlers ein Druck $P_1 = 34.47$ bar $> P_{m,0K}$. Auch bei Berücksichtigung des aus der Druckeichung resultierenden Fehlers von ca. 5 mbar (Gl. 5.4) gilt immer noch $P_0 < P_{m,0K} < P_1$. Wegen eines möglichen Unterkühlungseffekts müssen

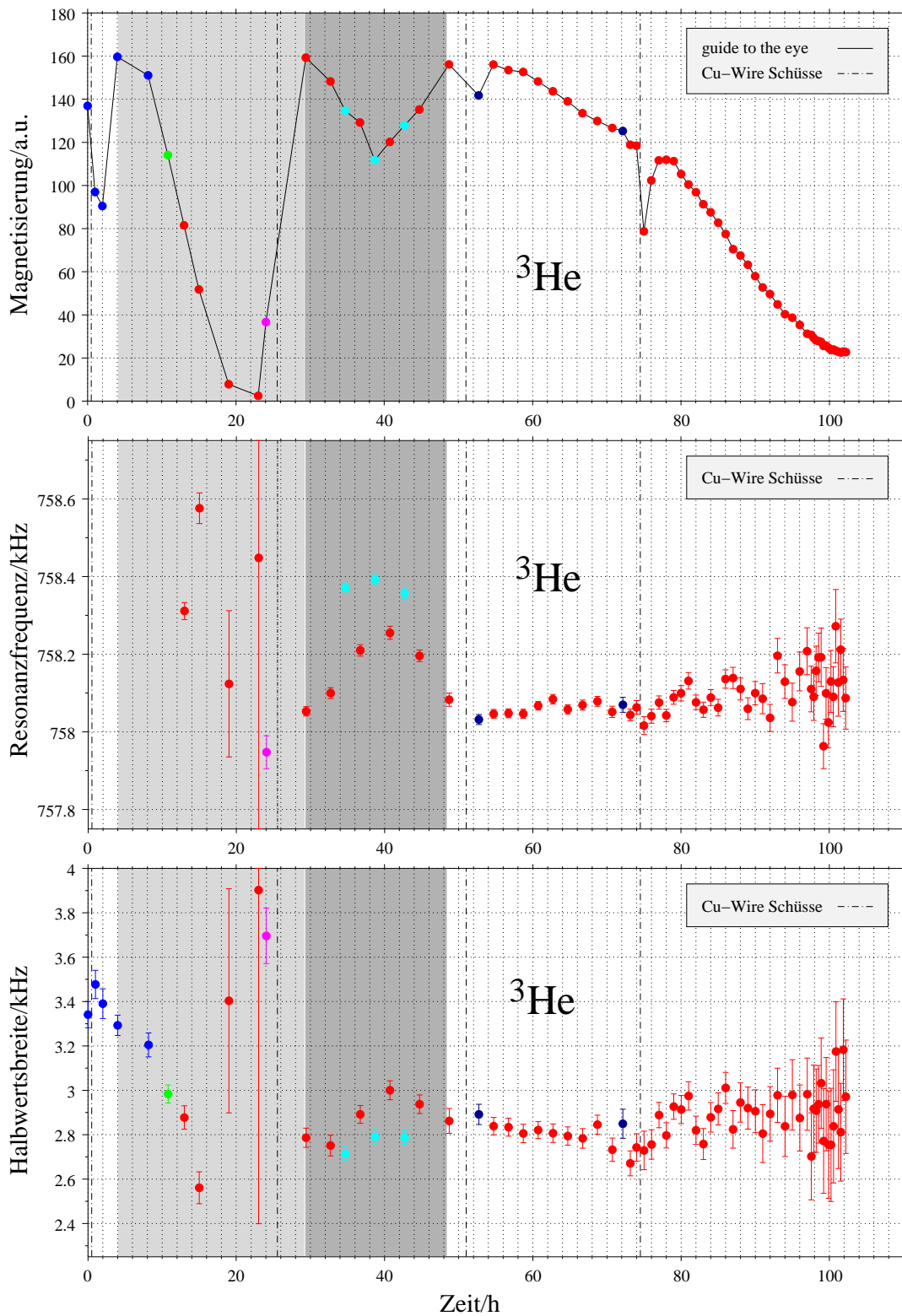


Abbildung 6.6: Magnetisierung, Halbwertsbreite und Resonanzfrequenz von ^3He in Abhängigkeit von der Zeit, gemessen mit gepulster NMR. Punkte mit gleicher Farbe haben die gleiche Eichung.

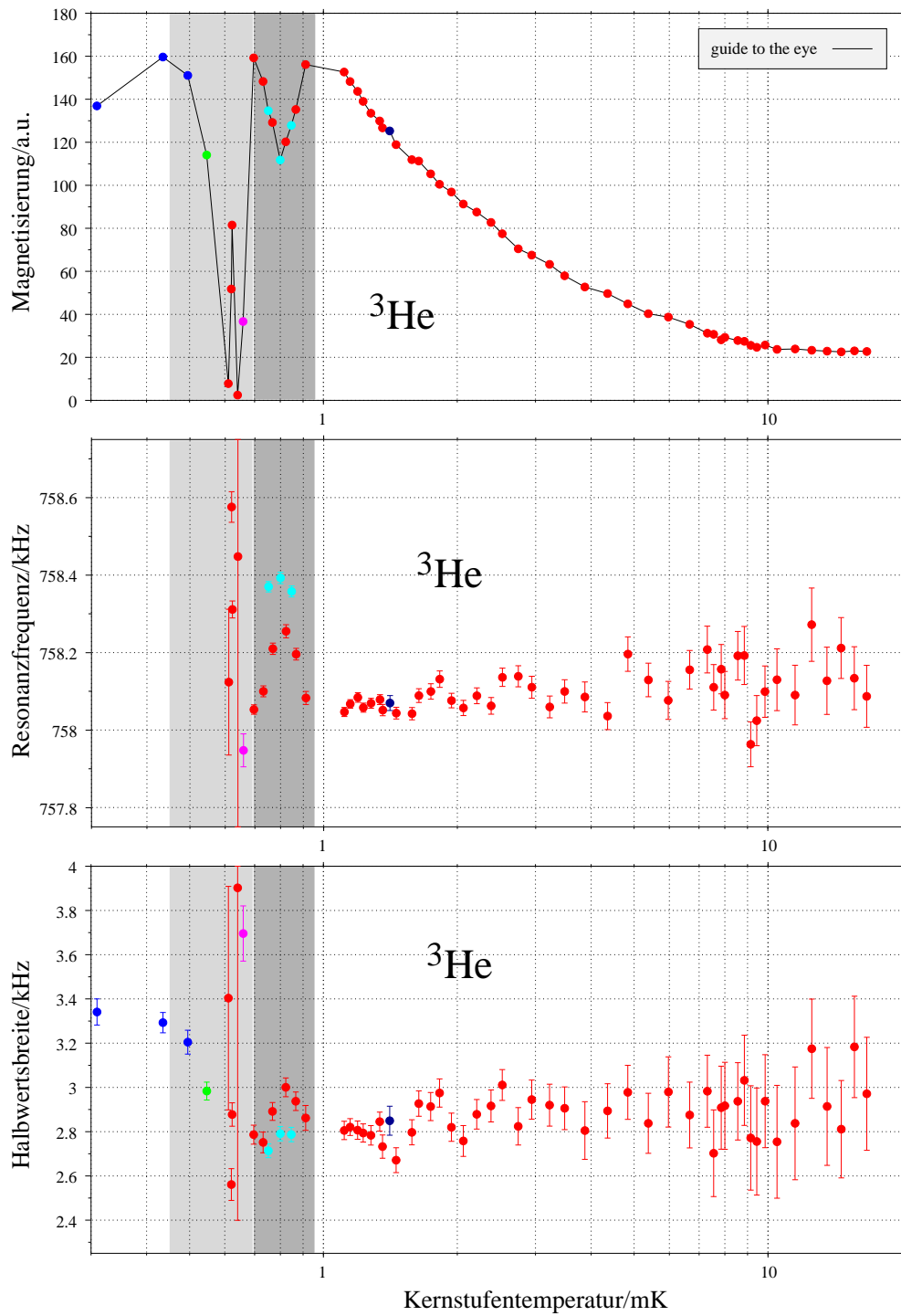


Abbildung 6.7: Magnetisierung, Halbwertsbreite und Resonanzfrequenz von ^3He in Abhängigkeit von der Temperatur der Kernstufe, gemessen mit gepulster NMR. Punkte mit gleicher Farbe haben die gleiche Eichung. Punkte, deren Magnetisierung durch vorangegangene Cu-Wire-Schüsse unterdrückt ist, sind der Übersichtlichkeit halber nicht eingezeichnet.

diese Verhältnisse jedoch (besonders im Sinter) nicht zwingend zu einem fest-flüssig-Phasenübergang beim Abkühlen führen.

Die komplizierte Form der Kurven aus den Abben. 6.6 und 6.7 legt den Verdacht nahe, dass eine plausible Beschreibung verschiedene Ereignisse zu verschiedenen Zeitpunkten und deren mögliche Überlappung umfassen muss. In diesem Sinne wird in dieser Arbeit eine in sich konsistente Erklärung der Messergebnissen gegeben und gegebenenfalls mit theoretischen Betrachtungen untermauert. Einen klaren „Beweis“ verhindern mehrere Gründe. Erstens sind die Messdaten teilweise nicht von ausreichender Qualität. Oft mussten gerade in interessanten Bereichen nicht objektiv einordenbare Punkte weggelassen werden. Zweitens war es wegen der aufwendigen Aufbauarbeiten (siehe auch Kap. 4) und der langen Zeitdauer einer einzelnen Messreihe (ca. 3 – 4 Wochen) nicht möglich, im vorgegebenen Zeitrahmen von einem Jahr mehr aussagekräftige Daten zu produzieren und auszuwerten.

Zusammenfassend wurden folgende Ereignisse identifiziert (eine genauere Begründung folgt im Laufe dieses Abschnitts):

- thermische Überhitzung wegen einer Einstrahlung mit zu hoher Intensität oder zu wenig Zeitabstand zwischen den Schüssen
- fest-flüssig-Phasenübergang wegen des zu geringen Ausgangsdrucks P_1
- paramagnetisch-Niederfeld-Phasenübergang bei ca. 1 mK

Als Material des Drahtes der ^3He -Spule wurde Kupfer gewählt, um damit in der Zelle in direkter Nachbarschaft des ^3He zu thermometrieren. Dadurch wäre ein Vergleich der Kernstufentemperatur und der ^3He -Temperatur möglich geworden. Es stellt sich jedoch heraus, dass nach jedem Cu-Wire-Schuss (gestrichpunktete Linie in Abb. 6.6) das ^3He -Signal für 4 – 8 h unterdrückt ist. Wegen der geringen Menge Kupfer im Draht sind sehr starke Anregungspulse nötig, um einen gut messbaren FID zu erhalten. Dabei wird gegenüber dem ^3He - und dem Cu-Spulensignal mit dem 7-fachen Level und dem 2 – 6-fachen N eingestrahlt. Die Nichtlinearität des Diodenkästchens führt dazu, dass der vom Level herrührende Faktor sogar noch größer ist. Dadurch erwärmt sich der Spulendraht und überzieht sich mit warmem ^3He -Festkörper, der erst wieder langsam gekühlt werden muss. Selbst eine gute thermische Ankopplung des Spulendrahts an die Kernstufe konnte die verheerenden Auswirkungen der Cu-Wire Schüsse nicht beseitigen.

Im hellgrau schattierten Bereich liegt ein fest-flüssig-Phasenübergang vor. Trotz des etwas zu niedrigen Drucks in der Zelle unterkühlt der Festkörper jedoch zunächst

ohne zu schmelzen (blaue und grüne Punkte). Nach dem grünen Punkt wird die Resonanzfrequenz von 2.662 MHz nach unten auf 758 kHz verschoben. Das triggert nun den Schmelzprozess und die Polarisation nimmt sehr schnell auf weniger als 2% ihres Ausgangswerts ab. Gerade diesen Faktor 1/50 würde man für einen fest-flüssig-Phasenübergang erwarten. Weil es sich um einen Phasenübergang erster Ordnung handelt, sollte an diese Stelle wegen der negativen Steigung der Schmelzkurve schlagartig Schmelzwärme freiwerden. Tatsächlich sieht man einen deutlichen Peak in der Kernstufentemperatur zu dem Zeitpunkt, an dem die Flanke des Polarisationseinbruchs des ^3He am steilsten ist (vgl. Abb. 6.2). Auch ist die beobachtete Abnahme der Halbwertsbreite zumindest qualitativ durch „motional narrowing“ des NMR-Flüssigkeitssignals gegenüber dem Festkörpersignal begründbar. Die kurz darauffolgende Verfestigung spricht dafür, dass die beobachtete Druckerhöhung in der flüssigen Phase stattgefunden hat. Wegen des Sinters (Kondensationskerne!) ist eine Überhitzung der Flüssigkeit beim Überschreiten des Schmelzdrucks unwahrscheinlich. Auslöser der Druckänderung könnten zum Beispiel vom Einkondensieren herrührende Druckgradienten sein, die sich in der (hydrostatischen) Flüssigkeit ausgleichen. Eine Einwirkung von außen ist wegen des Blocks in der Kapillare wenig wahrscheinlich. Die ^3He -Flüssigkeit hat nun im Gegensatz zum Festkörper eine gute Wärmeleitfähigkeit und kühlt schnell auf die Temperatur der Kernstufe. Das bedeutet, dass der Polarisationzunahme durch Bildung von Festkörper wegen der einsetzenden antiferromagnetischen Ordnung eine Polarisationsabnahme entgegenwirkt.

Nach der Überschreitung eines Maximums bei $t = 29$ h dominiert im dunkelgrau schattierten Bereich nun die Ausbildung der magnetisch geordneten Phase. Klar erkennbar ist, dass an der Stelle des Magnetisierungsminimums sowohl in der Resonanzfrequenz als auch in der Halbwertsbreite deutlich ausgeprägte Maxima existieren. Eigentlich würde man bei einem Einkristall eine Aufspaltung in drei Peaks erwarten (siehe auch Abschn. 3.1). Wenn diese Aufspaltung jedoch wegen der Kristallorientierung klein gegen die Halbwertsbreite des paramagnetischen Peaks ist oder sich das spektrale Gewicht wegen der Existenz eines Polykristalls stark verteilt, findet man nur einen etwas breiteren Peak mit reduziertem spektralen Gewicht und u.U. verschobener Resonanzfrequenz. Er ist sozusagen die Einhüllende der aufgespaltenen Linien. Das nicht sehr homogene Magnetfeld des 8 T-Magneten führt dazu, dass die gemessene Linienbreite größer als die natürliche ist und erschwert es damit, evtl. aufgespaltene Strukturen zu sehen. Die Tatsache, dass der Übergang zum

paramagnetischen Verhalten bei einer Kernstufentemperatur von $T = 0.9$ mK auftritt, untermauert nochmal die Ansicht, dass sich im dunkelgrau schattierten Bereich das ^3He in der Niederfeldphase befindet. Außerdem ist sie ein Indiz dafür, dass die Kernstufentemperatur spätestens ab diesem Bereich ein verlässliches Maß für die ^3He -Temperatur darstellt und dass der Fehler der Temperatureichung deutlich kleiner ist als die in Abschn. 6.3 berechneten 23%. Unter der pessimistischen Annahme einer Unsicherheit von 0.05mK und einer Übergangstemperatur von 0.9mK reduziert sich der relative Fehler der Temperatureichung auf 7%. Mit dieser Bestätigung der Temperaturabschätzung, die ja der Ausgangspunkt der bis hierher führenden Überlegungen war, erweist sich die bisher gegebene Interpretation der Messergebnisse immerhin als selbstkonsistent.

Der paramagnetische Bereich zeigt ein Curie-Weiß-Gesetz mit einem $\Theta \approx -1.2$ mK (Abb. 6.8). Ein antiferromagnetisches Verhalten ist also klar erkennbar. Die Abschätzung von $T_N \approx 0.6$ mK durch Extrapolation stimmt trotz der wenig optimalen Qualität der Messdaten im Großen und Ganzen mit dem Resultat $T_N \approx 0.9$ mK aus den Magnetisierungseinbrüchen überein. Im Hochtemperaturbereich oberhalb von 10mK sättigt die Magnetisierung jedoch bei einem endlichen Wert größer Null (in Abb. 6.8 nicht mehr dargestellt). Der Grund dafür ist wahrscheinlich die schlechte Thermometrie in diesem Bereich wegen zu kurzer Schussintervalle und schlechtem Signal-Rausch-Verhältnis. Der resultierende Jitter ist in den Abben. 6.6 und 6.7 deutlich zu erkennen.

Alle beschriebenen Features sieht man sowohl im Magnetisierungs-Zeit-Plot (Abb. 6.6) als auch im Magnetisierungs-Temperatur-Diagramm (Abb. 6.7). Die implizit in letzterem steckende Annahme, dass für $T < 0.7$ mK, also vor der Rekondensation der Flüssigkeit, die ^3He -Temperatur der Kernstufe entspricht, ist aus den vorliegenden Daten nicht sicher ableitbar. Besonders in den ersten Stunden nach der Entmagnetisierung ist dies eher unwahrscheinlich. Der Plot ist in diesem Bereich also als eine „Was-wäre-wenn“-Darstellung zu interpretieren. Unter diesem Gesichtspunkt kann das Maximum bei $T = 0.65$ mK sehr wohl ein Artefakt sein. Ebensogut könnte es aber auch Ausdruck der einander entgegengesetzten Auswirkungen von Verfestigung und Kernordnung auf die Polarisation des ^3He sein.

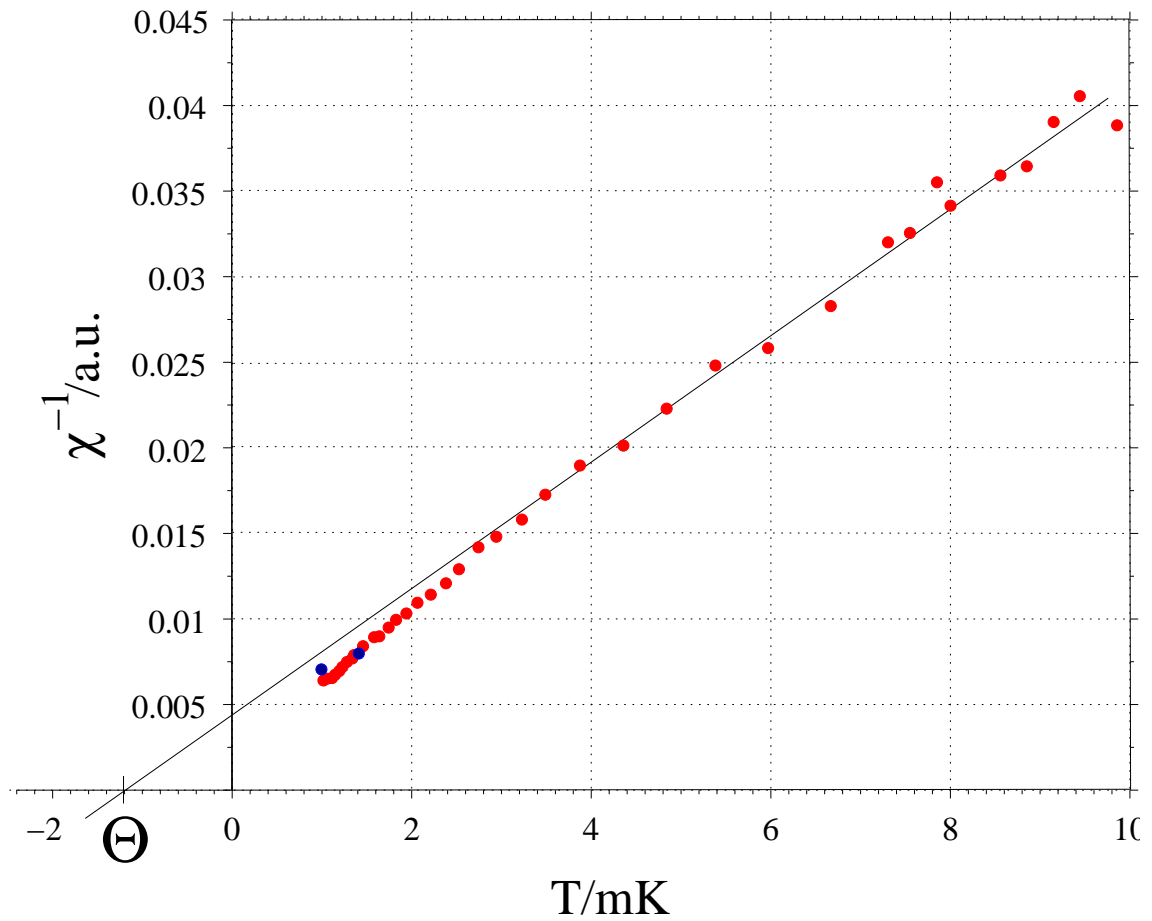


Abbildung 6.8: Inverse Suszeptibilität von ^3He , aufgetragen gegen die Temperatur der Kernstufe. Eine Extrapolation des Curie-Weiß-Verhaltens (durchgezogene Linie) ergibt $\Theta \approx -1.2$ mK. Die Farbcodierung der Punkte ist dieselbe wie in den Abben. 6.6 und 6.7.

Kapitel 7

Resumée und Ausblick

Die in Abschn. 2.2 formulierten konkreten Aufgaben sind sämtlich erledigt worden. Auch die Ziele wurden erreicht. Nach Planung, Aufbau, Lecktest und Programmiertätigkeit konnte in der letzten Messung der magnetische Phasenübergang etwa bei der erwarteten Temperatur gezeigt werden. Daraus kann man folgern, dass das Zelldesign prinzipiell geeignet ist, ^3He in einem Ag-Sinter auf Temperaturen unter 0.7 mK zu kühlen. Lediglich die Hoffnung, mit dem Kupferdraht der ^3He -NMR-Spule ein Thermometer in der Zelle zur Verfügung zu haben, hat sich als unpraktikabel zerschlagen.

Das in Kap. 6 dargelegte Bild wird vom neuesten Experiment in unserem Labor bestätigt. Bei einem ^3He -Druck von über 40 bar ist ein Einbruch der Magnetisierung von über 80% zu sehen. Bei diesem Druck erwartet man eine Übergangstemperatur von etwa $T_N = 0.5$ mK. Eine vorläufige Abschätzung der Temperatur der Kernstufe bestätigt dies. Die Kernstufe und mit ihr die Zelle bleiben mit repariertem Wärmeschalter mehr als 100 h unter 1 mK.

Ein Einkristall wurde noch nicht eindeutig nachgewiesen. Der Weg durch die flüssige Phase bei geeignetem Druck könnte jedoch eine Möglichkeit sein, bei der Rekristallisation einen Einkristall zu gewinnen. Dadurch würde man sich aufwendiges Tempern oder langwierige seed-selection-Prozeduren ersparen. Zu diesem Thema werden jedoch noch weitere, detailliertere Studien notwendig sein.

Während der Experimente wurden auch viele praktische Erkenntnisse über den Umgang mit ^3He bei ultratiefen Temperaturen gewonnen, die sowohl für das Berliner Neutronenstreuungsprojekt als auch für die Weiterführung des ^3He -Projekts in Garching von Nutzen sind. Die Wichtigkeit eines zuverlässigen Thermometers für $T < 1$ mK zumindest an der Kernstufe ist sowohl bei den (meist fehlgeschlagenen)

Testläufen als auch bei der Auswertung der Daten aus den erfolgreichen Messungen deutlich geworden. Allerdings wäre ein schnelleres Thermometer (z.B. Pt im SQUID) wünschenswert. Ein Thermometer in der Zelle, welches die Kühlung nicht stört, ist eine Idealvorstellung, die sich allerdings als schwer zu realisieren erwiesen hat.

Abschließend sei noch darauf hingewiesen, dass die Messungen an ^3He im Sinter vorgenommen wurden. Ob dieses sich genau so verhält wie freies ^3He , ist nicht geklärt. Jedoch sind mit dem Nachweis, dass das ^3He im Sinter mit dem in Garching vorhandenen Kühlsystem auf deutlich unter seine Ordnungstemperatur gekühlt werden kann, auch die Chancen für eine erfolgreiche Realisierung von anderen Magnetisierungsmessexperimenten wie SQUID, Torquemeter oder Faradaywaage deutlich gestiegen.

Anhang A

Rechnerunterstützung

A.1 Verwendete Computersysteme

Der Messcomputer ist ein PC mit Intel-80286-Prozessor und dem Betriebssystem MSDOS. Dieser Rechner ist völlig ausreichend für die Messwerterfassung. Außerdem ist seine niedrige Taktfrequenz (6 MHz) von Vorteil, weil er so weniger Noise auf die Masse und damit weniger Wärmeeintrag in das Kühlsystem verursacht.

Die Messgeräte werden über den GPIB-Bus angesteuert und ausgelesen. GPIB steht für „general purpose interface bus“ und bezeichnet einen seriellen Bus, an den man bis zu 30 Geräte anschließen kann. Das GPIB-Kabel darf jedoch bei Betrieb der Kernstufe nicht in die Messkabine des Kühlsystems geführt werden, da es sehr starken Noise verursacht. Deshalb müssen alle automatisch auszulesenden Geräte (AFGU, Oszilloskop) außerhalb der Kabine betrieben werden. Die Antennenwirkung der BNC-Kabel dieser Geräte, die statt dessen in die Kabine hineingeführt werden, sind das kleinere Übel und müssen in Kauf genommen werden. Alle Messgeräte in der Kabine, die nicht unbedingt notwendig sind, werden bei Betrieb der Kernstufe ebenfalls aus Noise-Gründen abgeschaltet. Dies betrifft insbesondere die Anzeige des Kalte-Platte-Thermometers.

Die Auswertung der Daten erfolgt jeweils nach einer Messreihe auf einem leistungsfähigeren Rechner mit einer AMD Athlon 900 MHz-CPU. Das verwendete Betriebssystem ist Linux.

A.2 Messprogramme

Die Messprogramme sind in Borland Turbo Pascal 7.0 geschrieben. Sie wurden sämtlich selbst geschrieben. Das Kernstück ist die Unit TIME.PAS; sie stellt Routinen zur Verwaltung einer Ereignisliste zur Verfügung, von denen jedes Einzelne in einem eigenen, vom Benutzer wählbaren Zeitabstand regelmäßig ausgeführt wird.

Das einfache Messwerterfassungsprogramm FAHDIPR7.PAS akzeptiert bis zu neun Ereignisse aus einer Konfigurationsdatei. Diese entsprechen der Abfrage bestimmter Geräte. Unterstützt werden derzeit die Digitalmultimeter Prema 5000/5001, das Diptron 3 Plus von Wallace&Tiernan, sowie die Andeen-Hagerlin Kapazitätsbrücke 2500A. Alle Messwerte können in eine Datei geschrieben und/oder graphisch dargestellt werden.

Das Programm für gepulste NMR (FPULS2K.PAS) liest ebenfalls bis zu neun Ereignisse aus einer Konfigurationsdatei. Zusätzlich kann es neben dem gewöhnlichen Auslesen von Messinstrumenten selbständig NMR-Schüsse durchführen. Die gemessenen FIDs werden bereits vom Oszilloskop mittels dessen eingebauter FFT-Funktion fouriertransformiert. Die verwendete Fensterfunktion ist eine einfache Rechteckfunktion. Das resultierende Frequenz-Amplituden-Spektrum wird zunächst als Binärdatei vom Computer gelesen und dann als ASCII-Datei auf der Festplatte gespeichert. Zusätzlich wird eine Log-Datei mit allen relevanten Einstellungen erstellt.

A.3 Auswertungsprogramme

Die Programme zur Auswertung sind alle in OCTAVE geschrieben, einer MATLAB-kompatiblen matrixorientierten Interpretersprache. Die Bearbeitung großer Dateien mit spaltenweisen Messwerten gestaltet sich in OCTAVE sehr einfach. Außerdem existiert eine Programmierschnittstelle zu GNU PLOT, mit der sich dessen mächtige Graphik- und Fitmöglichkeiten erschließen. Der Geschwindigkeitsnachteil einer Interpretersprache ist auf dem verwendeten Rechner (AMD Athlon 900MHz CPU) bei den zu verarbeitenden Datenmengen nicht von Bedeutung.

Die Bearbeitung der Spektren erfolgt zunächst automatisch. Nur in wenigen Problemfällen muss „von Hand“ nachkorrigiert werden. Dies ist bei über 1000 Spektren eine nicht zu unterschätzende Hilfe.

Zunächst müssen die rohen Spektren auf den passenden Frequenzbereich zugeschnitten und Störlinien daraus entfernt werden. Insbesondere AM-Radiosender

können bei kleinen Signalamplituden das Spektrum dominieren und so den Fit verfälschen. Bei den Kupferspektren muss zusätzlich der ^{65}Cu -Peak weggeschnitten werden. Dieser ist, weil das Einstrahlungsmaximum nicht bei seiner Resonanzfrequenz liegt, meist dispersiv verzogen, d.h. er hat nicht mehr die symmetrische Lorentzform. Bei all diesen Operationen ist darauf zu achten, dass nicht versehentlich wichtiger Informationsgehalt aus den Spektren entfernt wird. Insbesondere muss für einen guten Fit ein Mittelweg zwischen ausreichend viel, aber möglichst noisefreiem Untergrund gefunden werden.

Die Fits wurden mit GNU PLOT durchgeführt. Die Gesamtfunktion besteht aus der tatsächlichen NMR-Linie, einer Lorentzlinie und einem „Fuß“, der durch die Fensterfunktion des FFT-Algorithmus am Oszilloskop verursacht wird:

$$f(\omega) = \frac{M\Delta\omega}{(\omega - \omega_0)^2 - (\Delta\omega)^2} + \frac{A_{\text{Fuß}}\Delta\omega_{\text{Fuß}}}{(\omega - \omega_0)^2 - (\Delta\omega_{\text{Fuß}})^2} + f_0 \quad (\text{A.1})$$

Dabei ist M die Fläche unter dem Peak und ein Maß für die Magnetisierung der Probe, $\Delta\omega$ die Halbwertsbreite des Peaks, ω_0 die Resonanzfrequenz und f_0 der Rauschuntergrund. Es stellt sich heraus, dass die Amplitude des Fußes immer einen bestimmten, festen Prozentsatz n der Peakamplitude M ausmacht. Deshalb kann man die Gl. A.1 auch als

$$f(\omega) = \frac{M\Delta\omega}{(\omega - \omega_0)^2 - (\Delta\omega)^2} + \frac{nM\Delta\omega_{\text{Fuß}}^2/\Delta\omega}{(\omega - \omega_0)^2 - (\Delta\omega_{\text{Fuß}})^2} + f_0 \quad (\text{A.2})$$

schreiben. Die Anfangswerte für den Fit werden aus den gereinigten Rohspektren ermittelt, für den Fuß haben sich $n \approx 0.05$ und $\Delta\omega_{\text{Fuß}} \approx 50$ kHz bewährt. Danach wird ein mittlerer Fuß bestimmt, d.h. n und $\Delta\omega_{\text{Fuß}}$ werden über alle Spektren gemittelt, deren Fuß sich vom Untergrund deutlich unterscheiden lässt und bei denen der Fit nicht offensichtlich falsch ist. Mit diesen fixierten Mittelwerten werden alle Spektren dann nochmal gefittet. Durch diese Vorgehensweise wird auch in stark verrauschten Spektren der von der Digitalisierung herrührende Fuß berücksichtigt. Wegen der reduzierten Zahl der freien Parameter erweist sich dieser zweite Fit als sehr zuverlässig.

Literaturverzeichnis

- [1] I. I. Pomeranchuk, Zhur. Eksp. i. Theor. Fiz. 20, 919 (1950).
- [2] M. F. Panczyk und E. D. Adams, Phys. Ref. 187, 321 (1969).
- [3] W. P. Kirk, E. B. Osgood and M. Garber, Phys. Ref. Lett. 23, 833 (1969).
- [4] S. H. Castles und E. D. Adams, Phys. Ref. Lett 30, 1125 (1973).
- [5] W. P. Kirk und E. D. Adams, Phys. Ref. Lett. 27, 392 (1971).
- [6] E. D. Adams, E. A. Schuberth, G. E. Haas und D. M. Bakalyar, Phys. Rev. Lett. 44, 792 (1980).
- [7] D. D. Osheroff, M. C. Cross und D. S. Fisher, Phys. Rev. Lett. 44, 792 (1980).
- [8] Y. Feng, P. Schiffler und D. D. Osheroff, Phys. Rev. Lett. 65, 1450 (1991).
- [9] Y. Sasaki, T. Matsushita, T. Mizusaki und A. Hirai, Phys. Rev. B, 44, 7362 (1991).
- [10] T. Kusumoto, O. Ishikawa, T. Mizusaki und A. Hirai, J. Low. Temp. Phys. 59, 269 (1985).
- [11] E. A. Schuberth, D. M. Bakalyar und E. D. Adams, Phys. Rev. Lett. 42 Vol. 2, 101 (1980).
- [12] D. D. Osheroff, J. Low Temp. Phys. 87, Nos. 3/4, 297 (1992).
- [13] E. Schuberth, „Festes ^3He : kernspinmagnetische Eigenschaften“, Vorlesungsskript an der Technischen Universität München (2000).
- [14] G. M. Kalvius, „Grundlagen des Magnetismus“, Vorlesungsskript an der Technischen Universität München (1985).

- [15] F. Pobell, „Matter and Methods at Low Temperatures“, Springer-Verlag (1992).
- [16] R. B. Kummer, „Effects of a Magnetic Field on Nuclear Spin Ordering in Solid ^3He “, Dissertationsschrift an der University of Florida (1975).
- [17] E. R. Grilly, *J. Low Temp. Phys.* 4, p. 615 (1971).
- [18] G. A. Baker Jr., H. E. Gilbert J. Eve und G. S. Rushbrooke, *Phys. Ref* 164, 800 (1967).
- [19] M. Roger, J. H. Hetherington und J. M. Delrieu, *Rev. Mod. Phys* 55, 1 (1983).
- [20] H. Godfrin und D. D. Osheroff, *Phys. Rev. B* 38, 4492 (1988).
- [21] D. M. Ceperley und G. Jacucci, *Phys. Rev. Lett.* 58, 1648 (1987).
- [22] A. Abragam, „Principles of Nuclear Magnetism“, Claredon Press, Oxford (1986).
- [23] O. V. Lounasmaa, „Experimental Principles and Methods below 1K“, Academic Press (1974).
- [24] Michael Schuh, „Aufbau eines ^3He -Schmelzdruckthermometers zur Verwendung in magnetischen Feldern“, Diplomarbeit am Walther-Meißner-Institut für Tieftemperaturforschung in Garching (1994).
- [25] M. Kubota, H. R. Folle, Ch. Buchal, R. M. Mueller und F. Pobell, *Phys. Ref. Lett.* 45, No. 22, 1812 (1980).