

核整列固体ヘリウム3の磁性

Magnetism of Nuclear Ordered Solid ^3He

佐々木豊^{1,2}

¹京都大学低温物質科学研究センター

²京都大学大学院理学研究科

Y. Sasaki^{1,2}

¹Research Center for Low Temperature and Materials Sciences, Kyoto University

²Graduate School of Science, Kyoto University

1. はじめに

本稿では1ミリケルビン以下のマイクロケルビン領域においてのみ存在する固体ヘリウム3の核磁気秩序相について紹介します。核磁気秩序相という言葉には耳慣れない方も多いかもかもしれませんが、日常よくお目にかかる物質の磁気秩序状態はその物質を構成する原子の原子核の周りを飛び交う電子の電子スピン交換相互作用が主役となって維持されているのに対して、原子核の核スピンそのものの交換相互作用が主役となって現れる秩序状態です。電子の磁気モーメントの大きさと比べて1000分の1と小さな核磁気モーメントが主役となるためには、おのずと1000分の1以下の低い温度領域まで冷却して他の自由度の活動を凍らせてしまうことが必要となります。このような磁性の研究をするためにはマイクロケルビン領域という途方もない超低温度まで試料を冷却する技術や、その温度にある試料に回復不能な擾乱を与えることなく測定する微小信号測定技術など、現在の人類が手にする極限環境技術の一つの極みといえる技術が必要となってきます。

さて、何ゆえにそのような苦勞を重ねてまでこの物理系を研究するのでしょうか。そこに山があるから登るだけではすまされないものがあるのです。本稿ではその理由の解説を試みてみたいと思います。

2. 固体ヘリウムとは

図1に示されているのはヘリウム3の相図です。日常お目にかかる物質とは異なり、圧力の低い状態では絶対零度でも固体にならず液体のままであることが見て取れると思います。このような特異性はヘリウム3が閉核構造を持つ希ガス原子で単原子のまま存在し、その軽さゆえに強い量子効果を持つことにより説明されます。この液体相は飽和蒸気圧下では1ミリケルビンで、電子系における超伝導現象と同様な対凝縮機構により、フェルミ粒子であるヘリウム3が2個対になってボーズ凝縮を起し、超流動性を示すことが知られています。この超流動相はP波の対凝縮状態であることが1970年代に確認され、1996年のノーベル物理学賞の対象となったこと[1]、またその理論的解明を対象として2003年のノーベル物理学賞が授与されたこと[2]は記憶に新しいことと思います。

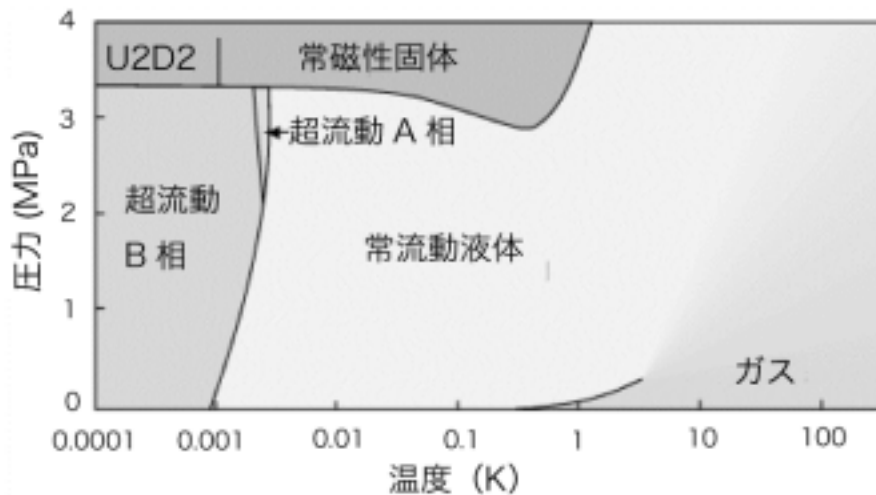


図 1 ヘリウム3の相図

この永遠の液体も圧力を上げていくとついには固化します．固液共存線も図 1 から見て取れるように温度変化に対して単調ではなく、0.3K で極小値を持つという不思議な格好をしています．これは液体ヘリウム3がフェルミ凝縮することによってエントロピーを失い、凝固点をさらに高圧側に押し上げる効果となって現れているものと理解されています．また固液共存線近傍の固体の結晶構造は bcc となっていますが、さらに高圧にすると hcp 構造となることが知られています．圧力をかけないと固化しない事実から理解されますように、この固体は原子間の引力相互作用によって固化するのではなく、むしろ斥力によって固化しています．満員電車の中で規則正しく立ち並ぶ人々を想像していただければ状況がお分かりいただけますでしょうか．さて、この固体ヘリウム3は温度の高いケルビン領域ではフォノンあるいは空格子などでその内部エネルギーの大半をよく記述できることが知られていますが、ミリケルビン領域まで冷却しますとそれらの自由度は次第に凍り付いていき、最後には核スピンの自由度が支配する世界に移り変わります．日常よくお目にかかる物質系では核スピン間の相互作用というのは、その周りを飛び交う電子スピンとの相互作用を通じた間接的な相互作用となりますが、液体すれすれの状態で存在している固体ヘリウム3の場合は原子そのものがその位置を入れ替える直接交換相互作用で記述されると理解されています．満員電車の中で場所を入れ替わる場面を想像していただければいいのですが、2粒子が場所を入れ替わる2体の直接交換相互作用に加えて、多数粒子が協調的に輪のように場所を入れ替わる多体交換相互作用が重要な役割を果たしていると考えられています．近年強相関物質系などでも電子間の多体交換相互作用の可能性について注目されているようですが、これぞ元祖多体交換物質系とでも言えましょう．

3. 多体交換相互作用

図 2 に示されているのは代表的な交換相互作用の模式図で、左から最近接の2体交換、3体交換、プラナー型4体交換相互作用を表しています[3]．各々の経路の上で各粒子が協調的に同方向にずれて場所を入れ替わることにより、位置の交換が成立します．このような粒子の直接交換は、量子性が強く隣り合った粒子間の波動関数の重なりが30%にも及ぶという特徴を反映していますが、それと同時に粒子間の相関のきわめて強い強相関係系ならではの特徴的な現象であるとも言えるでしょう．これ

$$H_{\text{spin}} = -\frac{1}{2} \sum_{n=1}^3 J_n \sum_{(i,j)} S_i \cdot S_j - \frac{1}{4} K_p \sum_{(i,j,k,l)} [(S_i \cdot S_j)(S_k \cdot S_l) + (S_i \cdot S_l)(S_k \cdot S_j) + (S_i \cdot S_k)(S_j \cdot S_l)]$$

$$J_1 = J_{nn} - 6J_t + 3K_p \quad J_2 = -4J_t + K_p \quad J_3 = K_p/2$$



図 2 多体交換の概念図

らの交換相互作用の大きさは1粒子あたり1 mKのオーダーで、2体4体が反強磁性構造を要求し、3体が強磁性構造を要求しますので、せめぎ合いの結果次節に説明するような特徴的なスピン構造を約1 mKという低い転移温度以下で持つこととなります。これら以外にも最近接でない2体交換や4体の輪が平面上に乗っていないフォルデッド型4体交換が考えられます。さらには6体、8体の交換相互作用も存在しておりその効果は無視できないとする理論が数値シミュレーションの結果として提示されています[4]。秩序相のスピン構造なども含め上記3種類の交換相互作用で定性的な振る舞いはうまく記述できるのですが、定量的に合わせようとするとうとうと不都合が生じます。交換相互作用の種類をどんどん増やして自由度を増やせば当然破綻は回避されてくるのですが、その収斂性や次々とパラメーターを増やしたときの整合性に若干の疑念が残るという意見もあります。しかしながら多体交換モデル以上に実験結果をうまく説明するモデルはなく、現状ではこのモデルに従って固体ヘリウムの磁性は理解されています。

4. 核磁気秩序相のスピン構造

図3に示されているのは、拮抗する反強磁性相互作用と強磁性相互作用のせめぎ合いの結果として生まれてくるU2D2と呼ばれるスピン構造です。結晶のbcc格子の(100)軸方向を異方軸として(100)面が強磁性面となり4枚周期でUp-Up-Down-Downと並ぶ構造をしています。このスピン構造は強磁場下では不安定となり約0.4Tの臨界磁場以上では別のスピン構造を持つ擬強磁性相へと転移します。図4に示されていますように立方対称性を持ち、飽和磁化の60%にも及ぶ巨大な自発磁化を持つことが特徴です。これらの反強磁性相は多体交換ハミルトニアンを元にスピン波近似によって計算された反強磁性マグノンによりよく記述されます。その詳細は省かせていただきますが、次節でその典型的

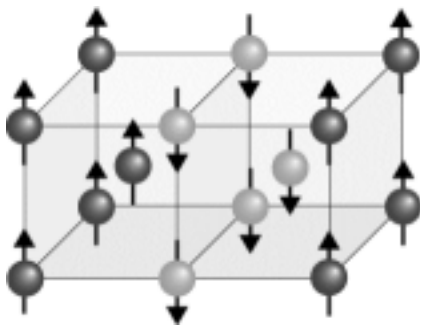


図 3 U2D2 構造

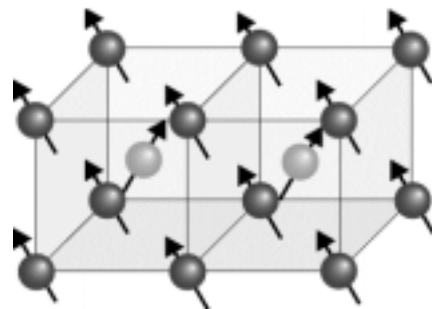


図 4 擬強磁性構造

な適用例として核磁気共鳴とスピン緩和過程についての研究を紹介します。

5. U2D2 相の NMR と核磁気緩和

図5はオシェロフら[5]によって1980年に初めて観測されたU2D2相のNMRスペクトルです。整列した核スピン間の双極子相互作用の大きさを反映した内部磁場 Ω_0/γ と外部磁場 H_0 の合成された共鳴周波数を示しています。上側に3本の共鳴曲線が見えているのは(100)の異方軸と等価な(010)(001)の3方向の異方軸を持つ3種類の磁区が結晶内に混在していることを示しています。各々の磁区特有の内部磁場の方向と外部磁場のなす角の違いを反映して3本の共鳴曲線を描く訳です。下側にも同様に3本の共鳴曲線があるはずですがそのうち1本は共鳴周波数が低すぎてこの図のデータでは観測されていません。単磁区の試料であれば上下1組の共鳴曲線のみが観測されることとなります。この2本の共鳴曲線はUp-Up-Down-Downの4副格子のうちUpの2副格子、Downの2副格子が各々一体となって運動する音響モードに対応する共鳴モードだと理解され、周波数の高いモードに対応するマグノン、低い方を マグノンと呼びます。

通常NMRによって高周波モードを励起すると、空間均一な励起をしますので波数 $k=0$ の マグノン $\alpha(0)$ を励起することになります。このときスピン系に注入されたエネルギーはマグノン散乱過程を経て緩和されていくこととなります。磁壁などによる散乱の効果が大きければ2マグノン過程による緩和機構が観測されてもよいのですが、実験ではその存在は確認されていません。緩和機構の主役は3マグノン過程、4マグノン過程(図6)であることが京大グループの研究の成果として明らかにされています[6,7]。

励起された $\alpha(0)$ が運動量とエネルギーを保存しながら $\beta(\pm k)$ へと変化していくのが3マグノン過程、さらに別の熱励起されたマグノンも介在するのが4マグノン過程となります。このときにモードとモードの関係が外部磁場の大きさによって変化するため、 $\omega_{\alpha(0)} < 2\omega_{\beta(0)}$ となる条件のときは3マグノン過程が禁止されてしまう

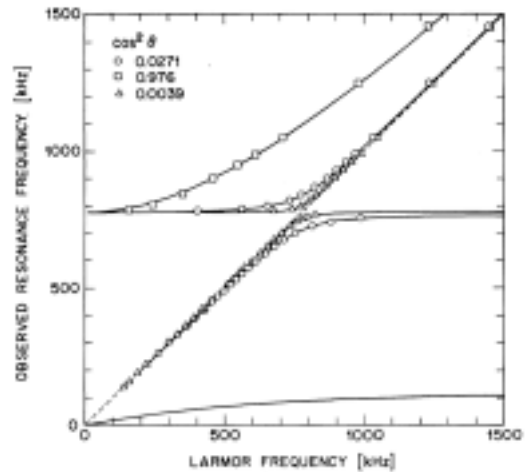


図5 U2D2相のNMRスペクトル

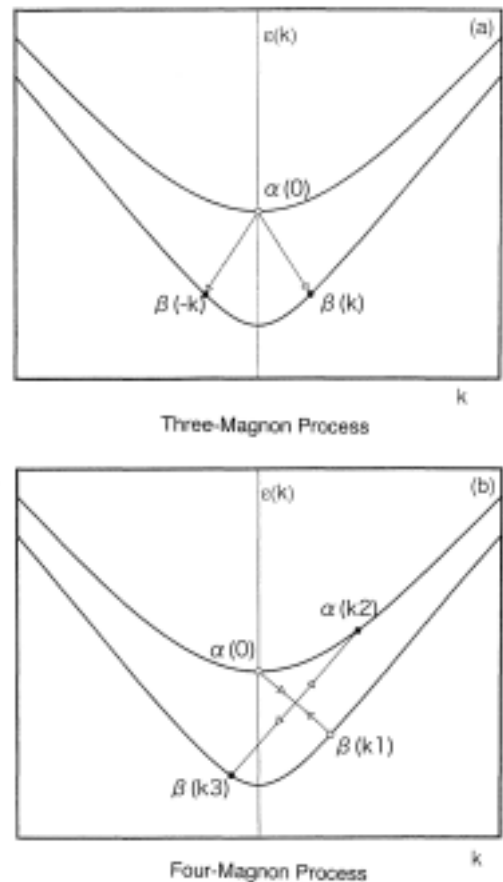


図6 3マグノン、4マグノン過程

こととなります。図7はそのときの低周波モードの共鳴線幅の変化を捉えたデータです[6]。

これらの結果以外にも、高周波モードと低周波モードが緩和を通して干渉することにより、ネガティブシフトとして知られる共鳴周波数がお互いに歩み寄る効果や、相手側のモードに対応するマグノンを緩和により多数注入することによりさらに緩和が促進される Suhl 不安定性などが、同じく京大グループの研究の成果として明らかにされています[8,9]。

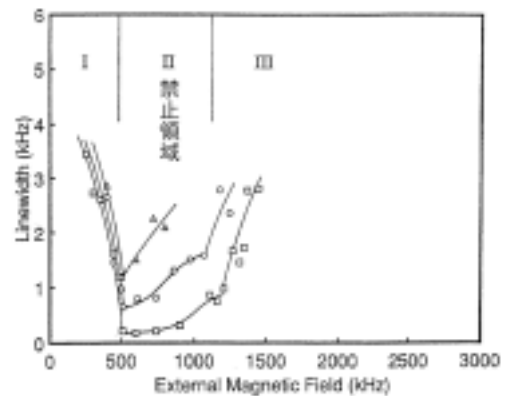


図 7 3 マグノン過程の禁止による共鳴線幅の変化

6. U2D2 相の MRI と磁区構造

これらの NMR による研究をしていく過程で U2D2 相の単結晶内に頑固なまでに多磁区構造が維持されることがわかりました。超流動ヘリウムの中で生成する固体ヘリウムの結晶はほとんどの場合単結晶ではあるのですが、結晶の成長融解を繰り返しても単磁区の試料を得ることはできません。静磁場に線形磁場勾配を重畳させて cwNMR によりスペクトルをとることによって、単結晶がその大きさと同程度のたかだか数個の磁区からなっていることがわかりました[6]。この当時にはそれ以上の詳細に踏み込むことは技術的にできなかつたのですが、その後 10 年を経て我々の開発した超低温 MRI 法を用いることによりついにその実態を測定することができるようになりました[10,11]。技術的な詳細は本稿では省略させていただきますが、病院などで使用されている MRI 装置とは違い、超低温生成装置に組み込まれた超伝導磁石を用いて定常的な勾配磁場をかけた状態で、パルス NMR の自由誘導減衰(FID)を測定してスペクトルを取得しています。通常 MRI では不利とされている定常磁場勾配を用いるのは、超低温での測定のために熱流入を押さえるという要請から来ています。また通常はスピネコーを測定してスペクトルを取得する方が有利なのですが、磁気秩序状態にある試料の非線形な挙動を避けるために、あえて小ティップ角の励起パルスのあとの FID を利用しています。

図8に示すのはこの方法で得られた U2D2 相の単結晶試料の中の磁区の分布です。各磁区について上方から投影した Top、正面から投影した Front、側面から投影した Side の3種類の投影図で表示してあります。この当時の装置ではまだ十分な分解能がありませんでしたので、かなりぼやけていますが水平断面が2ミリ角の直方体容器の中で3種類の磁区がまっすぐな磁壁を境に隣り合って存在している様子が見て取れます。この磁壁の方位を画像解析によって特定することができ、(110)面であることがわかりました。この磁壁の方位については多体交換モデルに基づいて、磁壁が格子間隔程度に薄いときに磁壁をまたぐ多体交換プロセスによる交換エネルギーの損失がもっとも小さな磁壁の配位が(110)面であるという、理論的予言が過去になされておりましたが[12]、ついに実験で確認されたということになります。また、結晶内の磁区の配置が、外部磁場の強

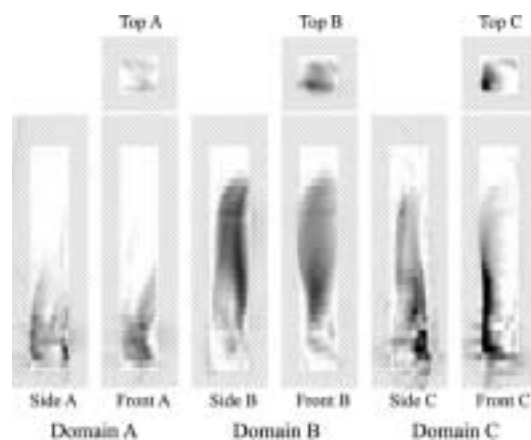


図 8 U2D2 相単結晶内の磁区分布

度を変化させてスピン構造の対称性の全く異なった高磁場相(HFP)の擬強磁性相に相転移してから後も、何らかの情報として結晶内に残り、再び磁場強度を下げて U2D2 相へと相転移させたときに、元の配置を回復するという、メモリー効果(図9)が観測されました。擬強磁性相のスピン系には一軸異方性の U2D2 相の対称性を記憶しておくすべはないと考えられますので、U2D2 相として結晶成長させたときにできた結晶構造の歪み(磁歪)あるいは線状の格子欠陥などの形で U2D2 相の磁区構造の情報を残しているのではないかと考えています。実際、擬強磁性相に転移したときに歪みを解消しやすいと考えられる、自由表面の割合の大きな微結晶ではメモリー効果を示さなかった例も観測されていますし、擬強磁性相に転移した後で一旦結晶を半分融解してから再度成長させた結晶では、外部磁場を下げて U2D2 相に戻ったときに、融解させなかった部分だけメモリー効果を示したという例も観測されています。なにぶん解像度の低い画像ですのでこれ以上の詳細を追求することは難しかったのですが、長年トラブルに見舞われて立ち上げに苦しんできた、新しい超低温度 MRI 装置がようやく稼働を開始して、実験を再開したところです。新しい装置で測定したよりクリアな画像の一例を図10に紹介します。直径4ミリの円筒容器の底に生成した 15 立方ミリ程度の結晶を3方向からの投影図で示しています。濃淡分けして示された3つの磁区(図中 A, B, C)が2枚の磁壁を挟んで共存している様子が見て取れます(本号の表紙には色分けして示されたより見やすい図が掲載されていますので、併せご覧ください。)なにぶん実験を開始したばかりですので、前出の諸問題について結論めいたことを提示できる段階ではありませんが、近いうちにご披露できることと期待しています。

7. U2D2 相の超音波

これらの NMR を主たる武器とした研究を通じて、細長い容器の底から結晶を成長させることにより、容器の上部空間ではほぼ単磁区となる試料を作れることがわかりました。その手法を利用して単磁区試料での超音波透過の実験をしています[13]。図11に示されるように、転移温度以下の音速の温度依存性はマグノンの自由度を反映して T^4 の曲線に乗ります。この温度依存部分の大きさをさらに結

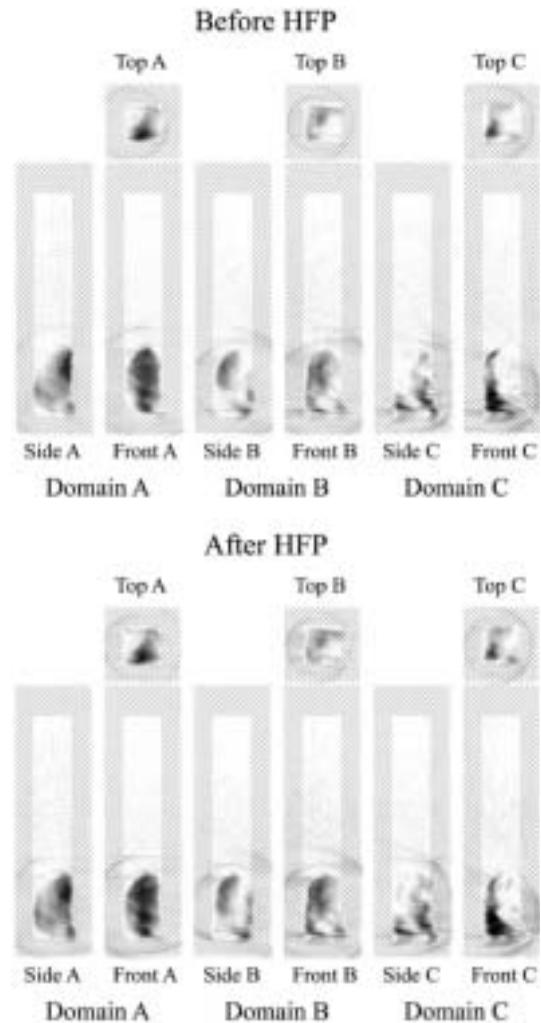


図9 U2D2 相の磁区分布のメモリー効果

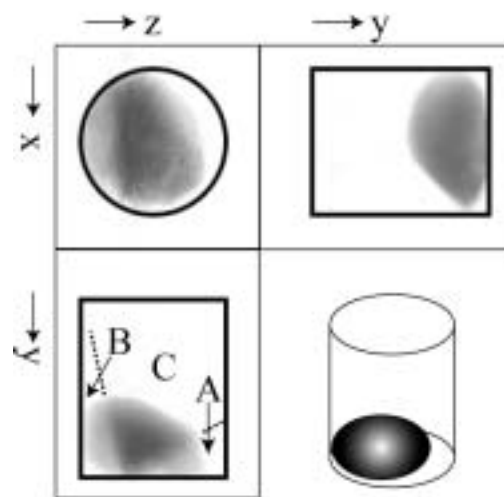


図10 U2D2 相単結晶の磁区分布

晶方位に対して詳しく解析しますと、結晶格子 bcc の持つ立方対称性ではなく、磁気秩序の対称性を反映した正方対称性を反映していることがわかりました。このことは交換相互作用の大きさがその交換ループの形状だけではなく、ループに乗っているスピンの状態の組み合わせにもよっていると考えることで理解できます。詳細については参考文献[13]をご覧くださいのですが、さらに詳しく解析を進めると、各交換相互作用の大きさの密度依存性を表すグルナイゼン定数が交換に参加する粒子の数に関わらず一定でなければ、得られたデータの解釈に自己矛盾を来すことがわかります。交換相互作用のグルナイゼン定数はおよそ 18 程度のかなり大きな値を持つということが従来の研究よりわかっていますが、2 体、3 体、4 体といずれの交換相互作用も共通のグルナイゼン定数を持つというのは、多体交換モデルの体系のなかではかなり受け入れがたい拘束条件となります。前節まではいかに多体交換モデルが成功しているかという例ばかりを並べてきましたが、ここに至って現状の多体交換モデルの限界が見えてきたのではないかと考えています。現在さらに精度を上げ、音速の温度依存性のみならず磁場依存性も測定することにより、さらに問題点を明確にすべく実験準備を進めています。

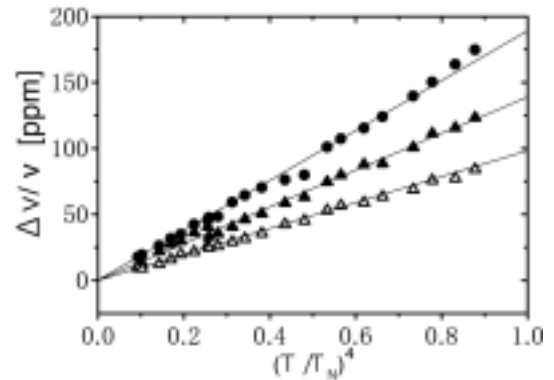


図 11 U2D2 相での音速の温度変化

8. あとがきに代えて エキゾチックなモデル

このように、固体ヘリウム 3 の核磁気秩序相の磁性を理解する上で、定量的にも成功してきた多体交換モデルの限界がそろそろ見えてきたのではないかと我々は考えています。近年強相関電子系の研究が発展していく中で、多体交換相互作用を取り入れる必要性が取りざたされているようですが、一歩先を進んでいる“強相関”固体ヘリウム研究者としては、多体交換相互作用モデルの更なる進化あるいは破綻を目指して、研究を進めていく使命があるのではないかと考えます。その行く末を予言したりすることは筆者の知見を超えてしまいますが、最近になって提案されたエキゾチックなモデルを紹介して本稿を締めくくりたいと思います。

Gov らによる新提案[14]は各種の多体交換相互作用間のバランスによって U2D2 相が安定化されるという従来の議論とは真っ向から対立します。その骨子は bcc 格子の上に配置されたヘリウムの電子軌道が裸のときの 1s からゆがめられ、格子構造を反映した p 波状態を含むようになり、そのため電子がダイナミックな反強磁性秩序を持ち、その電子状態を通した核スピン間の間接交換相互作用が U2D2 相を安定化させるというものです。かなり荒削りな理論で同分野の研究者の間でも真偽がよくわからないと評判のモデルなのですが、同じモデルを磁性を持たない同位体の固体ヘリウム 4 に適用したときに期待される、新しいフォノンモードを中性子散乱によって確認したという報告[15]もなされ、提唱者の元気さとも相まってなかなか否定しがたい魅力を抱えた新提案となっています。このような現象が根っ子にあれば、多体交換相互作用という形で強相関状態を近似的に記述したときに、交換リングの大きさによらない密度依存性を持つという問題点も解消されるかもしれません。彼の議論のままでは高压相の hcp 固体ヘリウム 3 の磁性の理解に破綻を来すという指摘もあるのですが、今後の展開が期待されるどころです。

以上ご紹介申し上げましたように、固体ヘリウム3の磁性の研究は超低温における核磁気秩序状態を利用したある意味で理想的な環境での磁性の研究に留まるものではなく、強相関多体系という現在もなおその理論的取り扱い法に困難があり発展し続けている研究分野の最先端にある、研究テーマであると言っても過言ではないでしょう。

最後になりましたが、この研究は水崎隆雄教授をはじめとする理学研究科物理学・宇宙物理学専攻物理学第一分野の低温物理学研究室のメンバーによる共同研究であり、研究の各過程でご尽力いただいた卒業生、院生諸君や、このような極限環境での実験技術の開発に多大な貢献をしていただいた物理教室技術開発室の技官の皆様、とりわけ新しい超低温MRI装置の開発に従事していただいた早田恵美さんに感謝いたします。

参考文献

- [1] <http://www.nobel.se/physics/laureates/1996/press.html>
- [2] <http://www.nobel.se/physics/laureates/2003/press.html>
- [3] M. Roger *et al.*, Rev. Mod. Physics **55**,1(1983).
- [4] D.M. Ceperley and G. Jacucci, Phys. Rev. Lett. **58**, 1648(1987).
- [5] D.D. Osheroff *et al.*, Phys. Rev. Lett. **44**, 792(1980).
- [6] Y. Sasaki *et al.*, Phys. Rev. **B43**, 7362(1991).
- [7] T. Ohmi and M. Tsubota, J. Low Temp. Phys. **83**, 177(1991).
- [8] T. Matsushita *et al.*, J. Low Temp. Physics. **105**, 67(1996).
- [9] I. Fomin and T. Ohmi, Phys. Lett. **A180**, 141(1993).
- [10] Y. Sasaki *et al.*, J. Low Temp. Phys. **113**, 921(1998).
- [11] T. Ueno *et al.*, J. Low Temp. Phys. **127**, 1(2002).
- [12] M. Tsubota *et al.*, Prog. Theor. Phys. **76**, 1222(1986).
- [13] M. Yamaguchi *et al.*, Phys. Rev. Lett. **91**, 115301(2003).
- [14] N. Gov and E. Polturak, J. Low Temp. Phys. **128**, 55(2002).
- [15] T. Markovich *et al.*, Phys. Rev. Lett. **19**, 195301(2002).