

固体 ^3He の反強磁性の U U D D 状態の磁性理論

筑波大学物理 宗田 敏雄

§ 1 序

固体 ^3He の融解点近傍の反強磁性相が 1 次転移で $T_N = 1.03 \text{ mK}$ 以下に存在することが Idalperin¹⁾ の圧力の温度変化からのエントロピー測定より解り, Goodkind²⁾ と Adams³⁾ の帯磁率の測定から 2 スピンの交換相互作用の Heisenberg 理論ではこの反強磁性が説明出来ないことが明らかになった。また Osheroff⁴⁾ の NMR の実験により, この相が U U D D (上上下下) のスピン構造を持つことが明らかになった。

3 個と 4 個のスピン交換相互作用を取り入れた分子場理論が Roger⁵⁾ によって展開され, 色々な物理量, 例えば垂直方向帯磁率 χ_{\perp} , NMR の揺動数, スピン波速度, U U D D 相に隣接する高磁場相 HFP の臨界磁場 $H_c(0)$ と K での飽和磁化 M が, 70 ~ 80% の精度で説明される。

これをもう少し進め, スピン相関を取り入れたオ-ターパラメータの有限温度での振舞いを記述出来る様に, スピン波理論を含む decoupling の方法を用いたグリーン関数の理論を展開して, 分子場理論より物理量の実験とのえっと良一致をめぐる理論のついで話をやる。⁶⁾

§ 2 グリーン関数の運動方程式と Decoupling

ハミルトニアンは次の 2 体と 4 体のスピン交換相互作用で与えられる。

$$H = -2 \sum_{\substack{F=nn \\ ij}} J_f (S_i \cdot S_j) - 4 \sum_{\substack{\alpha=P \\ ijke}} K_{\alpha} [(S_i \cdot S_j)(S_k \cdot S_l) + (S_i \cdot S_k)(S_j \cdot S_l) - (S_i \cdot S_l)(S_j \cdot S_k)]$$

(P: planar, F: folded). (1)

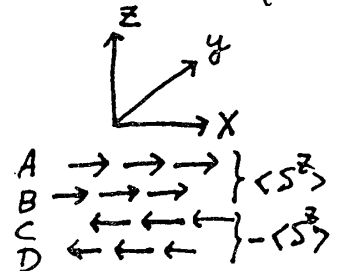
今 A, B, C, D を U U D D のスピンの副格子とすると, $X_i, Y_j \in A, B, C, D$ で $S_{X_i}^+$ と $S_{Y_j}^-$ の 2 時間遷延グリーン関数は下式で与えられる。

$$G_{X_i Y_j} = \langle \langle S_{X_i}^+(t); S_{Y_j}^-(0) \rangle \rangle. \quad (2)$$

オ-ターパラメータ $\langle S^z \rangle$ を次の様に導入する。 $\langle S^z \rangle$ の添字

$$\langle S_{A_i}^z \rangle = \langle S_{B_i}^z \rangle = -\langle S_{C_i}^z \rangle = -\langle S_{D_i}^z \rangle = \langle S^z \rangle.$$

の z と座標軸との関係は右図で与えられる (磁場は z 方向に与える)。



グリーン関数の運動方程式は, 時間 t でのある格子点でのスピンの従う Heisenberg 方程式と時間 0 での他の格子点にあるスピンとの遷延積を作ることで与えられる。この運動方程式に出て来る 2 個のスピンとの積と, 新たに出て来る 4 個のスピンとの積を次の様に decouple する。例之は,

$$\langle \langle S_{A_m}^+ S_{B_j}^z - S_{A_m}^z S_{B_j}^+; S_{A_0}^- \rangle \rangle \simeq \langle S^z \rangle (\langle \langle S_{A_m}^+; S_{A_0}^- \rangle \rangle - \langle \langle S_{B_j}^+; S_{A_0}^- \rangle \rangle). \quad (\text{Tyabli'kov 法})$$

オ 1 図

$$\langle [S_{Am}^+, (S_{Ai} S_{Bj}) (S_{Ak} S_{Bl})] ; S_{A_0}^- \rangle = -\frac{1}{2} \langle \{ (S_{Bj}^z S_{Ak}^z S_{Bl}^z + S_{Ai}^z S_{Bj}^z S_{Bl}^z) S_{Am}^+ + [S_{Bj}^z (S_{Ai}^+ S_{Bl}^- + S_{Ak}^+ S_{Bl}^-) + (S_{Ai}^+ S_{Bj}^- + S_{Ak}^+ S_{Bl}^-) S_{Bl}^z] S_{Am}^+ - S_{Am}^z [(S_{Ai}^z S_{Bj}^z S_{Bl}^+ + S_{Ak}^z S_{Bj}^z S_{Bl}^+) + S_{Bj}^z (S_{Ai}^+ S_{Bl}^- + S_{Ak}^+ S_{Bl}^-) + (S_{Ai}^+ S_{Bj}^- + S_{Ak}^+ S_{Bl}^-) S_{Bl}^z] \} ; S_{A_0}^- \rangle \simeq -\langle S^z \rangle \{ [\langle S^z \rangle^2 + \langle S_A^+ S_B^- \rangle + \langle S_A^- S_B^+ \rangle] \langle S_{Am}^+ ; S_{A_0}^- \rangle - \frac{1}{2} [\langle S^z \rangle^2 + \langle S_A^+ S_B^- \rangle + \langle S_A^- S_B^+ \rangle] \langle S_{Bj}^+ ; S_{A_0}^- \rangle + \langle S_{Bl}^+ ; S_{A_0}^- \rangle \}.$$

この結果の運動方程式を時間と空間にフーリエ変換し比を行列式で書いて、

$$G_{BA}(\omega) = \sum_{R_i - R_j} \int dt e^{ik(R_i - R_j) + i\omega t} G_{B; A_j}(t)$$

$$\begin{pmatrix} -\omega + M & a & c & b^+ \\ a^+ & -\omega + M & b & c \\ c & b^+ & \omega + M & a \\ b & c & a^+ & \omega + M \end{pmatrix} \begin{pmatrix} G_{AA} \\ G_{BA} \\ G_{CA} \\ G_{DA} \end{pmatrix} = -2\langle S^z \rangle \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} \quad (3)$$

この出てくる行列要素 M, a, b, c は格子間隔 d とあると次式で与えられる。

$$M = 2\langle S^z \rangle \{ 2J_2 - 4J_3 - 4(3K_p + K_F) [4\langle S^z \rangle^2 + 2\langle S_B^+ S_A^- \rangle - \langle S_D^+ S_A^- \rangle + \langle S_B^+ S_D^- \rangle_{2n}] - 2 [J_2 + 2K_p (2\langle S^z \rangle^2 - \langle S_B^+ S_D^- \rangle_{2n})] (\cos dk_x + \cos dk_y) - [4J_3 + 2K_p (4\langle S^z \rangle^2 - \langle S_B^+ S_D^- \rangle_{3n})] \cos dk_x \cos dk_y \} \quad (4)$$

$$a = 2\langle S^z \rangle [-J_1 + 2(3K_p + K_F) (2\langle S^z \rangle^2 - \langle S_D^+ S_A^- \rangle)] \cdot 4 \cos \frac{dk_x}{2} \cos \frac{dk_y}{2} e^{-\frac{idk_z}{2}} \quad (5)$$

$$b = 2\langle S^z \rangle [-J_1 - 2(3K_p + K_F) (2\langle S^z \rangle^2 - \langle S_B^+ S_A^- \rangle)] \cdot 4 \cos \frac{dk_x}{2} \cos \frac{dk_y}{2} e^{-\frac{idk_z}{2}} \quad (6)$$

$$c = 4\langle S^z \rangle \cos dk_z \{ -J_2 + 4(K_p + 2K_F) (\langle S^z \rangle^2 - \langle S_A^+ S_A^- \rangle_{3n}) + [-2J_3 + 4K_p (\langle S^z \rangle^2 - \langle S_A^+ S_A^- \rangle_{2n})] (\cos dk_x + \cos dk_y) \} \quad (7)$$

スピンの交換相互作用を3体の J_t と4体の K_p と K_F で書くとき、 $nm, 2nn$ と $3nn$ の結合定数 J_f は、次式で与えられることを示すことが出来る(裸の J_f は無いとして)。

$$J_1 = 3(-2J_t + K_p + K_F), \quad J_2 = -4J_t + K_p + 2K_F, \quad J_3 = K_p/2.$$

今後は、 α -リ-ワイズ温度 $\theta = -2.6$ mK とスピンの波速度 8.4 ± 0.4 cm/s (実験値) を用いて $J_t = -0.130$ mK, $K_p = -0.385$ mK, $K_F = 0$ の210 α - α -組を用いる。また(3)式の固有値はスピンの波運動のエネルギー Δ_{\pm} と与えられる。スピンの波速度 c

$$\omega^2 = \Delta_{\pm}^2; \quad C_{acoustic} = \Delta_-/k, \quad C_{optical} = \Delta_+/k \quad (\Delta_{\pm} = \Delta_+ - \Delta_+(k=0))$$

2種類 $C_{acoustic}$ と $C_{optical}$ を決めより求められる。また(3)式を解くことがラ-ン関数 G_{AA}, G_{BA}, G_{CA} と G_{DA} が得られる。

$$G_{AA} = -2\langle S^z \rangle \frac{-\omega^2 - M\omega^2 + (M^2|a|^2 - |b|^2 - c^2)\omega + M(M^2|a|^2 - |b|^2 - c^2) + (a^+b^+ + ab)c}{(\omega^2 - \Delta_+^2)(\omega^2 - \Delta_-^2)}$$

$$G_{BA} = \dots, \quad G_{CA} = \dots, \quad G_{DA} = \dots \quad (8)$$

§ 3 $\langle S^z(T) \rangle$ と垂直帯磁率 $\chi_L(T)$ と NMR の振動数 $\Omega(T)$ に掛かる方程式

相関関数 $\langle S_{X_i}^+ S_{Y_j}^- \rangle$ がラ-ン関数の虚部より次のスペクトル定理で与えられる。

$$\langle S_{X_i}^+ S_{Y_j}^- \rangle = \lim_{\epsilon \rightarrow 0} \frac{i}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \frac{\langle S_{X_i}^+ S_{Y_j}^- \rangle_{\omega+i\epsilon} - \langle S_{X_i}^+ S_{Y_j}^- \rangle_{\omega-i\epsilon}}{e^{\beta\omega} - 1} \quad (9)$$

特に $X_i = Y_j = A_i$ とし、恒等式 $\langle S_{A_i}^+ S_{A_i}^- \rangle = \frac{1}{2} + \langle S^z(T) \rangle$ を用いると、 $\langle S^z(T) \rangle$ の方程式

$$\frac{1}{2\langle S^z(T) \rangle} = \frac{4}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{1}{\Delta_+^2 - \Delta_-^2} \{ M(\Delta_+ \coth \frac{\beta\Delta_+}{2} - \Delta_- \coth \frac{\beta\Delta_-}{2}) - [M(M^2|a|^2 - |b|^2 - c^2) +$$

$$(a^+b^+ + ab)c \left[\frac{\coth \frac{\beta\Delta^+}{2}}{\Delta^+} - \frac{\coth \frac{\beta\Delta^-}{2}}{\Delta^-} \right] \quad (10)$$

が得られます。これは $\langle S^z(T) \rangle$ の self-consistent 方程式である。(Nは³He原子の総数)。

垂直磁率 $\chi_L(T)$ は S_{A_i} の線形(1次)の様な振る舞いをする。

$$\chi_L(T) = \left(\frac{\gamma\hbar}{2}\right)^2 \int_0^\beta d\lambda \sum_j \langle S_{x_j}^+(\lambda) S_{A_i}^-(i;\lambda) \rangle = N \left(\frac{\gamma\hbar}{2}\right)^2 \lim_{k \rightarrow 0} \frac{4\langle S^z \rangle}{\Delta^+ \Delta^-} [M(M^2 - |a|^2 - |b|^2 - c^2) + (a^+b^+ + ab)(M+c) - M^2(a^+b^-c) + c(c^2 - |a|^2 - |b|^2) + (a^+ - b^-)c^2 + (a^+ - b^-)(a^-b^+) + 2Mc(a^+ + b^-)] = N \left(\frac{\gamma\hbar}{2}\right)^2 \frac{1}{-2(2J_1 + J_2 + 4J_3 + 3Kp \cdot 4\langle S^z(T) \rangle^2)} \quad (11)$$

NMRの振動数 $\Omega(T)$ の温度依存性は次式より求められる。

$$(\Omega(T)/\Omega(0))^2 = (\langle S^z(T) \rangle / \langle S^z(0) \rangle)^2 (\chi_L(0) / \chi_L(T)) \quad (12)$$

ここで我々の用いようとする3種類の近似法について話をします。行列要素の M, a, b と c の表式は、以下の取扱いをするのである。

- (I) $\langle S^z(T) \rangle = \frac{1}{2}$, $\langle S_x^+ S_y^- \rangle = 0$ とするものはスピンの非理論と同じ結果を出す。
- (II) $\langle S_x^+ S_y^- \rangle = 0$ とし、 $\langle S^z(T) \rangle$, $\langle S^z(T) \rangle^3$ を保持するのは RPA である。
- (III) $\langle S^z(T) \rangle$ と $\langle S_x^+ S_y^- \rangle(T)$ を与え、保持するのは2格子系中のスピン相関を取り入れた近似である。

特に(I)においてスピンの縮み $\Delta S^z = \frac{1}{2} - \langle S^z \rangle$ とすると(10)は self-consistent に解かれ、左辺を $1 + 2\Delta S^z$ と置き右辺は $\langle S^z \rangle = \frac{1}{2}$ としスピンの縮みを求める。

§ 4 自由エネルギーの表式と T_N の決定

ヘルムホルツの自由エネルギー

$$F_{\text{UDD}}/N = (E(T) - TS)/N \quad (13)$$

正常磁性のエネルギー

$$F_{\text{para}}/N = -k_B T \ln 2 \quad (14)$$

と等しいと置いて、 T_N を求める。この内部エネルギー $E(T)$ は $E_0(T) = \langle H \rangle$ とスピンの振動の中核のエネルギー $E_{\text{sw}}(T)$ の和として与えられる。

$$E_0(T)/N = -2(J_2 - 2J_3)\langle S^z(T) \rangle^2 + 8(3Kp + Kf)\langle S^z(T) \rangle^4 \quad (15)$$

$E_{\text{sw}}(T)$ は状態密度関数 $\rho(\omega) = -\frac{2}{\pi} \text{Im} G(k, \omega)$ を用いて、次の様に与えられる。

$$E_{\text{sw}}(T) = \sum_k \int \frac{d\omega}{2\pi} \frac{2\omega}{e^{\beta\omega} + 1} \left[-\text{Im} \sum_{x=A,B,C,D} G_x A(k, \omega) \right] = \sum_k 2\langle S^z(T) \rangle \left\{ (\Delta^+ \coth \frac{\beta\Delta^+}{2} + \Delta^- \coth \frac{\beta\Delta^-}{2}) - 2M \right\} \quad (16)$$

一方、 $\int_0^T \frac{1}{T'} \frac{dE(T')}{dT'} dT'$ は内部エネルギーより次の通り与えられる。

$$S = \int_0^T \frac{1}{T'} \frac{dE(T')}{dT'} dT' \quad (17)$$

介子場の自由エネルギーは $\langle S^z(T) \rangle = \frac{1}{2}$ とおき、 $\chi_{\text{in}} \neq 0$ $S=0$ $F=E_0(0)$ が導かれ $T_N^{\text{Mol}} = 1.2 \text{ mK}$ が我々の J_+ と Kp の $2J_+$ と $-2J_-$ 組の値と一致する。

§ 5 高磁場相 HFP と Hc(0)

高磁場相は bcc の AB の 2 つの副格子から成る pseudo ferro 磁場相と考へてみる。各副格子でのスピン偏極 μ_A と μ_B ($\mu = 2\langle S^z \rangle$) は互に $2 \cos^{-1} u = 2\mu$ 中の

の角度を仮定している。この中には互軸方向の磁場と $\mu_A \times \mu_B$ が成す角度がある。Kの自由エネルギーの $T=0$ の値は、 $K = K_p + K_f$ とし磁場を H とすると次のように与えられる。

$$E_{pf}/N = -\frac{1}{2} [(-4J_1 + 3J_2 + 6J_3) + 3Kp^4 + 24Kp^4u + 8(J_1 - 3Kp^2)p^2u^2 - \frac{2\hbar}{2} Hpu] \quad (18)$$

一方 UDD 相の $T=0$ のエネルギー a の値は、 $\S 4$ の E を用いて次のように与えられる。

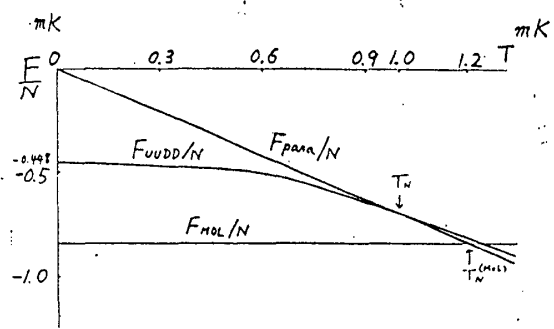
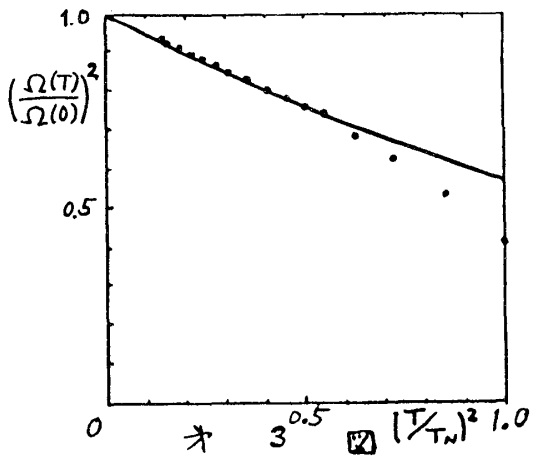
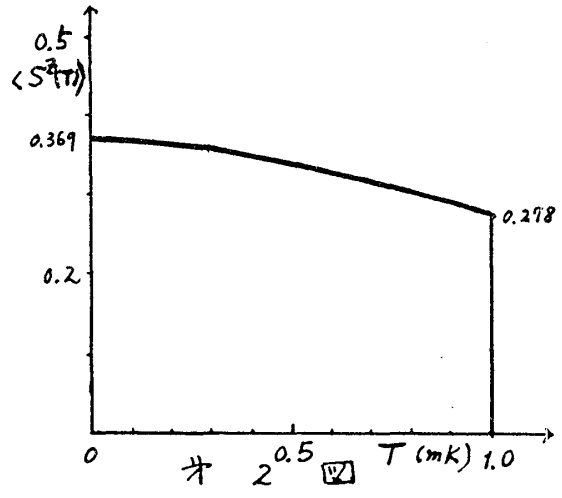
$$E_{UDD}/N = E(0)/N - \frac{1}{2} \chi_L(0) H^2 \quad (19)$$

この両式を等しいと置いて $H_c(0)$ が求められる。これは E_{pf} を極小とする u で決める。飽和磁化 M は $(\frac{2\hbar}{2}) N u = M_0 u$ と決める。

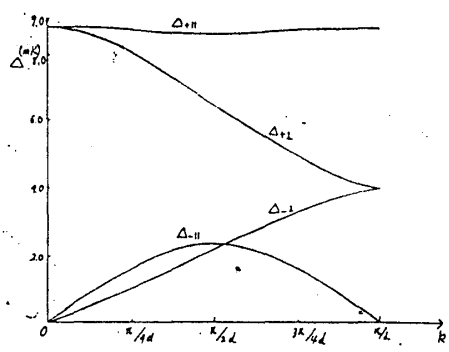
§ 6 計算の結果

$\S 3$ に述べた近似の種類に従って述べて行く。
 (I) スピン波理論は得られたすべての式において、但し $\langle S^2(T) \rangle$ の self consistent 方程式の左辺を $\langle S^2(T) \rangle$ を $1/2$ と置くことと近似し、これより求めたのがオ2図の $\langle S^2(T) \rangle$ の温度変化であり、 T_N はオ4図の自由エネルギーの UDD と常磁性の値の等しくなった温度より求めた。帯磁率 $\chi_L(T)$ は温度変化せず、 $\chi_L = 0.197 (\frac{2\hbar}{2})^2 N$ で T_N での χ_L は $\chi_L(T_N) / \chi_L(T_N) = 0.59$ (Shiga の実験は 0.43) である。NMR の振動数の2乗比 $[\Omega(T)/\Omega(0)]^2$ 、自由エネルギー F/N とスピン波励起エネルギーはそれぞれオ3、オ4とオ5図に示した。 $\Omega(T)$ は T_N 付近以外は黒丸で示した実験値と良く合う。自由エネルギーは常磁性状態への移行する点として求めた T_N は分子場のため F_{mol}/N と常磁性状態 χ の交点より下がり、実験値 1.0 mK をほぼ与える。

pseudo ferro 相についてと同様にスピン波理論を展開して、スピンの縮みを決めてから



オ 4 図

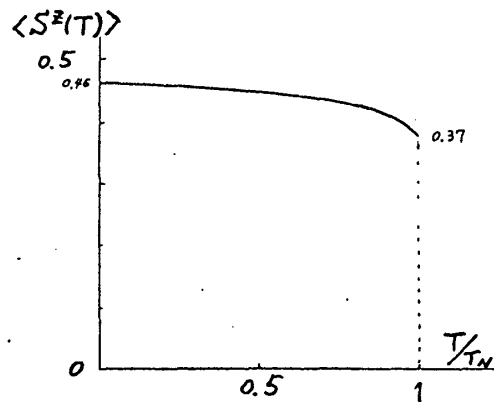


オ 5 図

$H_c(0)$ と M を計算すると、 $\langle S^z(0) \rangle = 0.383$ より $H_c(0) = 4.0 \text{ KG}$ と $M = 0.44$ ($\frac{1}{2}$) N とし Osheroff の実験の外挿値 $H_c(0) = 4.5 \text{ KG}$ と幾つかの μH^{-1} の実験値 $M = (0.40, 0.50 \text{ 又は } 0.70)$ ($\frac{1}{2}$) N にまあまあ良く合っている。

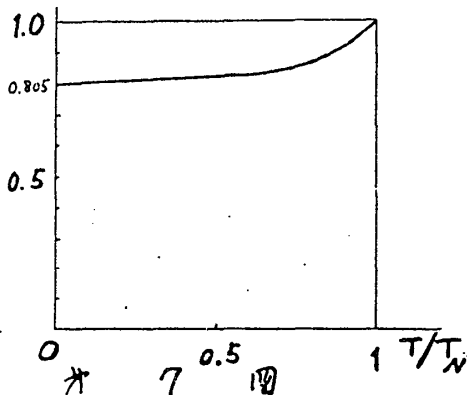
尚かつ5図の Δ_{\parallel} と Δ_{\perp} はそれぞれ \pm 軸方向に平行又は垂直の方向のスピン波励起エネルギー、それぞれ方向のスピン波速度 (acoustic) の平均は $C = (C_{\parallel} C_{\perp})^{1/2} = 6.54 \text{ cm/s}$ であり、実験値の 8.4 cm/s に較べると小さい値である。

(II) RPA 近似は行列要素の 2 格子点のスピン相関関数をすべて零と置き、オランダパラメータ $\langle S^z(T) \rangle$ をすべて保持するものである。この様にして $\langle S^z(T) \rangle$ の従う方程式 (10) を self consistent に解いた結果が6図で、特長的なことは $T = 0.625 \text{ mK}$ で解が急に無くなること、この T を T_N とし、画いた $\langle S^z(T) \rangle$ の温度依存性である。これを用いて7図に $\chi_L(T)$ の温度依存性を示した。但し $\chi_L(T_N)/\chi_L(T_N)$ は 0.79 である。[$\Omega(T)/\Omega(0)$] 2 の振舞いは8図に示した。黒丸は実験の点である。スピン波励起は5図と類似で、スピン波の速度の平均は 7.74 cm/s と改善された。



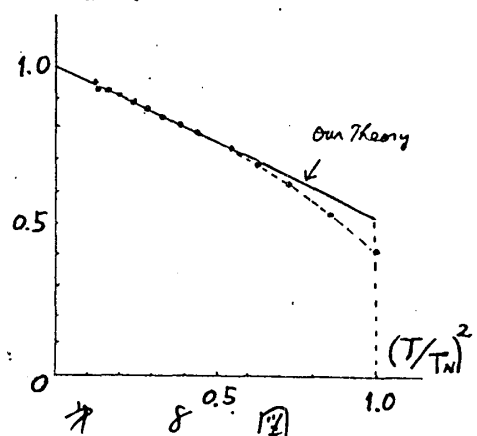
カ 6 図

$$\frac{\chi_L(T)}{\chi_L(T_N)}$$



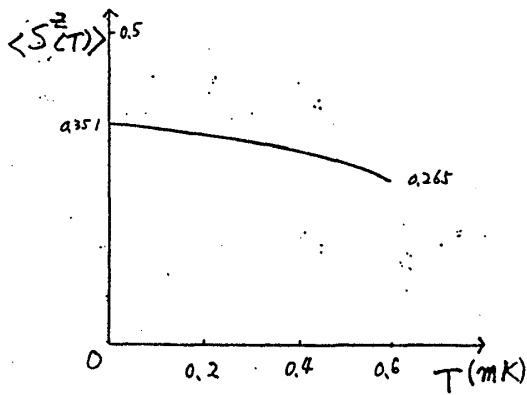
カ 7 図

$$[\Omega(T)/\Omega(0)]^2$$

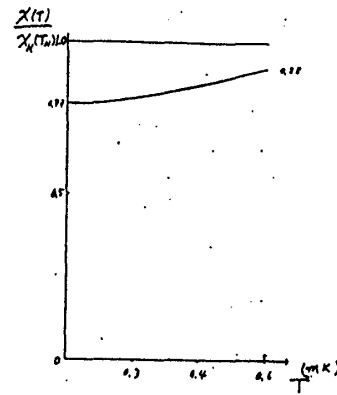


カ 8 図

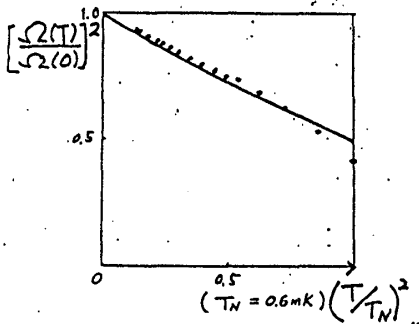
(III) 更に RPA の近似を求めた $\langle S^z(T) \rangle$ の値と、 0.625 mK 以上ではこれを外挿した値を用いて 2 格子点の 2 スピン相関関数 $\langle S_x^+ S_y^- \rangle$ を計算して、 $\langle S^z(T) \rangle$ の self-consistent な方程式の行列要素に出して来る 2 スピン相関関数を代入して $\langle S^z(T) \rangle$ を求めたのが9図である。 T_N としたのは12図で自由エネルギー F/N を求める時、 0.6 mK よりも上の所へスピンの零点のゆがみのエネルギーが正に有りまた分子偏のエネルギーより下がり、 $\langle S^z(T) \rangle$ の大なり自身 0.8 mK 程度 0 になるから、 0.6 mK を選んだ。 $\langle S^z(T) \rangle$ を用いて10図に $\chi_L(T)$ を求め、11図に [$\Omega(T)/\Omega(0)$] 2 を示した。黒丸は実験の点である。更にこれをもう一歩進めてこの $\langle S^z(T) \rangle$ を用いて $\langle S_x^+ S_y^- \rangle$ を計算して、 $\langle S^z(T) \rangle$ を self consistent に求めると、 $T = 0$ 以外に解がないと云う状況である。こ



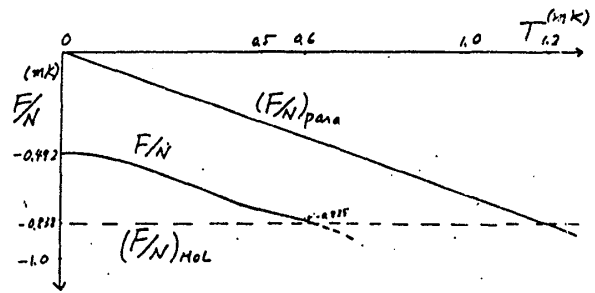
才 9 図



才 10 図



才 11 図



才 12 図

の結果はまだ preliminary である。 $H_c(0)$ については pseudo ferro 相の (II) と (III) の相
当する計算がまだないから、改善が必要である。

3 7 Discussion

スピンの理論は大体良い結果を与えている。 decoupling を進めると、 $\langle S^2(T) \rangle$ が 1/2 より
小さくなる為か観測と一致が無く、 0.6 mK 以上で解が無くなるのは計算のやり方が
悪いのか又は helical とか normal anti ferro とか simple cubic anti ferro の
状態に DUD D より移行している為か又知らず、 自由エネルギーを計算して今後検討する
。 この必要は芳田先生の論文に述べた通りで、 筑波大の新井秀昭先生の計算機のプログラ
ミングの作成と計算と、 pseudo ferro 相の理論計算は同大学院の兒島伸生先生の協力とで
出来上がったものである。

REFERENCE

- 1) W. P. Halperin et al, J. Low Temp. Phys. 31 (1978) 617.
- 2) T. C. Prewitt and J. M. Goodkind, Phys. Rev. Lett. 60A (1977) 156.
- 3) E. D. Adams et al, Phys. Lett. 64A (1977) 208.
- 4) D. D. Osheroff, M. C. Gross and D. S. Fisher, Phys. Rev. Lett. 44 (1980) 792.
- 5) M. Roger, J. M. Delrieu and J. H. Detherington, Rev. Mod. Phys. 55 (1983) 1.
- 6) T. Soda, T. Araki and K. Yosida, Proc. of ICM, Kyoto (1982).