

bcc ^3He の磁気転移

勤務先・氏名 岩橋克聡
名大理 安達健五

ヘリウム3は最も軽い不活性原子で低温で30気圧程度加圧するとb.c.c.の固体になる。固体になっても零点振動が激しく、原子の変位を u とすると $\sqrt{\langle u^2 \rangle}$ は最近接原子間距離の30%にも達する。このため早くから bcc ^3He の核磁性には原子同士の交換過程が重要な役割を果たしているだろうと思われていた。実際ここ二十数年間の多くの実験研究者の努力で bcc ^3He の磁性の全ぼうがほぼ明らかにされ、その磁性を支配しているのは磁気双極子相互作用により 10^3 倍も強い交換相互作用であることがわかった。

本研究の目的は実験を解析して bcc ^3He における交換相互作用の大きさを具体的に求めることである。

これまでの多くの実験は図1の相図に集約できる。(1)~(6) この図は澤田等⁽¹⁾からの転載で少し説明を加えてある。そう入図中の \uparrow は各格子点の原子のスピンの向きをあらわす。

秩序相のスピンの構造(図1のそう入図の up-up-down-down \equiv uudd, 及び Pseudo-Ferro \equiv PF)の決定は Osheroff に負うところが多い。彼は1mK以下で bcc ^3He の単結晶を作成し、外部磁場が4kOe以下で「容易面をもつ反強磁性体」の反強磁性共鳴を観測し、外場 \rightarrow 0での共鳴周波数 $\Omega_0 = \gamma \sqrt{H_A \cdot H_E}$ (H_E は exchange field, 帯磁率⁽⁶⁾から推定する)から異方性磁場 H_A を算出し、その大きさが uudd 構造の場合の磁気双極子相互作用による異方性磁場の大きさと一致することを見出した。外場が4kOe以上では、いろいろな方位の円柱状単結晶を作成して反磁場によるNMR共鳴周波数のシフトを観測し、結晶磁気異方性はなく、0.6 \times 飽和磁化程度の自

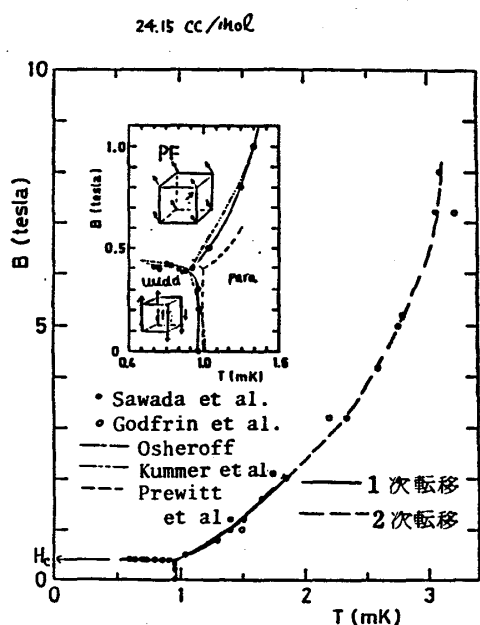


図 1

発磁化をもつ構造(これを満足する最も簡単なモデルがPF構造)であると結論した。

図1の結果は定性的には3-パラメータモデル⁽⁷⁾

— 図2に示す3種類のCyclic多体交換相互作用のみが支配的であるとする。— で説明できることがわかっている。また対応する3種類の交換積分 J_t, K_p, K_f は全て負である。⁽¹⁶⁾

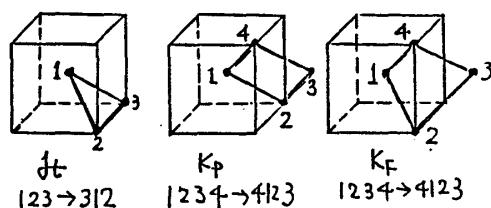


図 2

この場合スピンハミルトニアンは式 (1) で与えられる。

$$\begin{aligned}
 \psi = & \sum_{n=1}^3 \left[\sum_{(n_1 n_1) \text{ or } (n n n)} -2J_n S_i \cdot S_j + \sum_{\alpha=P, F} -4K_\alpha \sum_{i>j>k>l} (S_i \cdot S_j S_k \cdot S_l + S_j S_k S_l \cdot S_i - S_i \cdot S_k S_j \cdot S_l) \right] \\
 & - \mu H \sum S_{iz} \quad (1) \\
 J_1 = & 3(K_P + K_F - 2j_t) \quad J_2 = K_P + 2K_F - 4j_t \quad J_3 = K_P/2
 \end{aligned}$$

さて、これから K_P, K_F, j_t の値を決定することを試みる。まず $T=0, H=0$ で j_t, K_F の相対的な値によってどのような磁気構造があらわれるかを分子場近似 (以後MFAとあらわす) に計算した結果 (8) を図3に示す。

DS (100), SSQA 等の具体的な磁気構造については Reference (8) を参照されたい。これからの対象は図3で uudd と示した領域である。

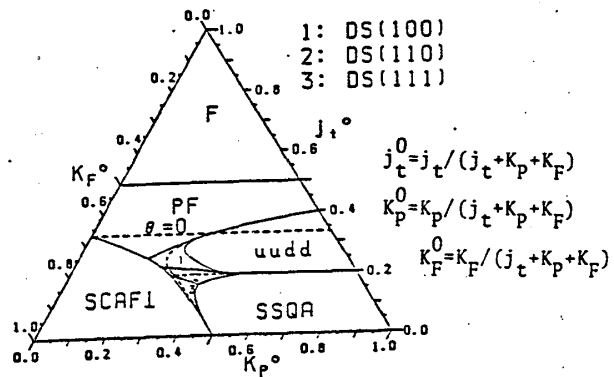


図 3

現実の $\text{bcc } ^3\text{He}$ の交換相互作用の大きさを決める物理量はいろいろある。一つは自由エネルギーが高温展開可能な高温領域での測定によるものである。この温度領域では

$$\left. \begin{aligned}
 C_V = & \frac{R}{4} e_2 T^{-2} - \frac{R}{4} e_3 T^{-1} + \dots \\
 1/\chi = & T - \theta + B T^{-1} - \dots
 \end{aligned} \right\} (2)$$

となり、 e_2, e_3, θ, B は正確に J_n, K_α で表わすことができる (Appendix I) からこれら4つの量を実験的に決定すれば、 J_n, K_α を求められる。しかし残念ながら実験的に確かなのは $e_2 \approx 7 \text{ mK}^2$ (24.2 cc/mol) だけのようである。 e_3 の測定例 (9), (10) もあるが測定温度範囲が (2) 式の展開でもっと高次項まで効きそうな領域である。 $-\theta$ はかつて 3 mK くらいといわれ、これを 1 mK くらいとしなければ説明できない磁場中での圧力測定 (11) は「なぞ」であったが、最近 $-\theta$ は実際 1 mK 程度 (12) という報告もある。

高温での測定で J_n, K_α を決定できないなら秩序相での data は使えないだろうか？ 反強磁性体の自由エネルギーはスピン波理論で計算でき、長波長近似が成り立つような低温では

$$F(T) = F(0) - \frac{\pi^2}{90} \frac{(kT)^4}{e_3} \quad (3) \quad \text{となる。}$$

Osheroff (13) は低温での融解圧を測定して図4の結果を得ている。この場合液体 ^3He の自由エネルギーはほとんど温度変化しない領域で $P'(0) - P(T)$ と ΔV (液体と固体の体積差) の積は $\text{bcc } ^3\text{He}$ の自由エネルギーの温度変化そのものと見なすことができる。我々はスピンの波間の相互作用を取り入れて自由エネルギーを計算した。(14), (15) 結果の一例を図5に示す。結論をいえば e_3 は実験的に求められていない。スピン波間の相互作用や、短波長のスピン波等の効果

のため、見かけ上 T^4 に比例するような温度変化があらわれただけで長波長近似が成立つのはもっと低温である。

図 1 で $H=0$ における一次転移温度 T_N は極わめて正確である。しかし T_N を求める理論は分子場近似くらいしかなく、この方法で求めた T_N は実際より数十% 過大評価しているだろう。また uudd から PF 相への一次転移の磁場 H_c も正確である。0 K での H_c の計算例を図 6 に示す。

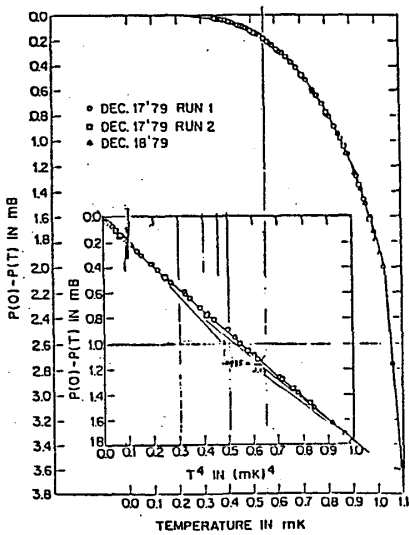


図 4

$$j_t = -0.1565 \text{ mK}$$

$$K_F = K_P = -0.2441 \text{ mK}$$

$$F(T) = F(0) - \frac{\pi^2 (kT)^2}{90 E_J^3}$$

$$F(T) \triangleq \text{const} - \frac{\pi^2 (kT)^2}{90 E_J^3} \quad 0.05 \leq T \leq 0.6 \text{ mK}$$

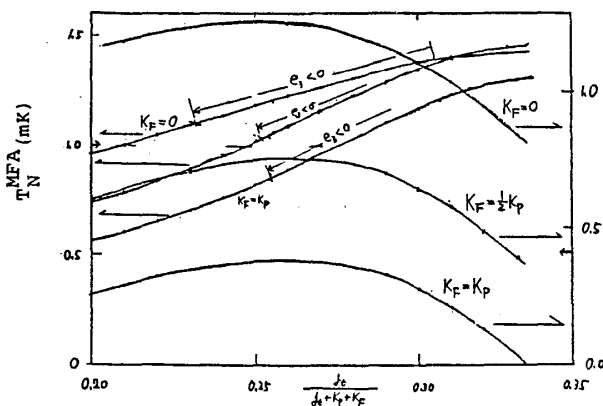


図 7

$F_{\text{uudd}}^{\text{spin wave}}$ 及び $F_{\text{PF}}^{\text{spin wave}}$ はスピン波間の相互作用を取り入れたスピン波理論による自由エネルギーを示す。

特徴的なことはスピン波近似に進むとスピンの零点運動によるエネルギーの利得は uudd 相の方が PF 相より大きいということである。これは Ferro ではエネルギーの利得は零であることから当然なことであろう。従って常に $H_c^{\text{spin-wave}} > H_c^{\text{MFA}}$ である。我々は種々の交換積分の組についての H_c の計算を行ったが $e_2 \approx 7 \text{ mK}^2$ とする限り、 $H_c^{\text{spin wave}} \sim H_c^{\text{MFA}} + 0.4 \text{ Tesla}$ くらいであった。図 7 に $e_2 = 7 \text{ mK}^2$ の場合 H_c^{MFA} , T_N^{MFA} と $j_t / j_t + K_F + K_P$ の関係を示す。

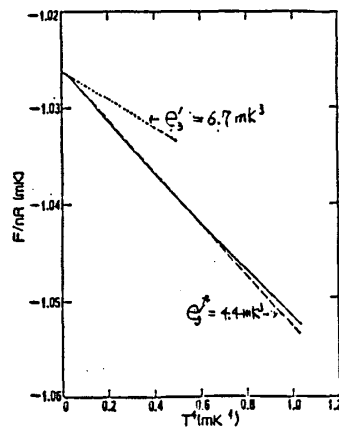


図 5

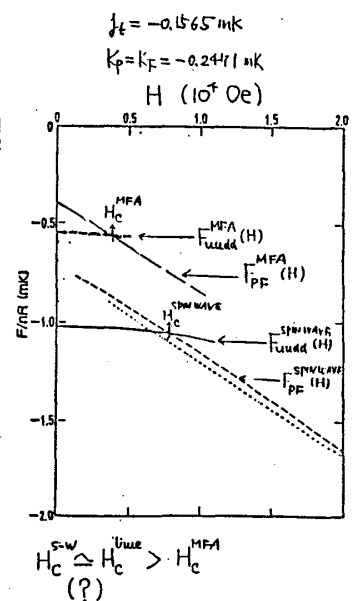


図 6

$$H_c^{\text{spin wave}} \approx H_c^{\text{uudd}} > H_c^{\text{MFA}} \quad (?)$$

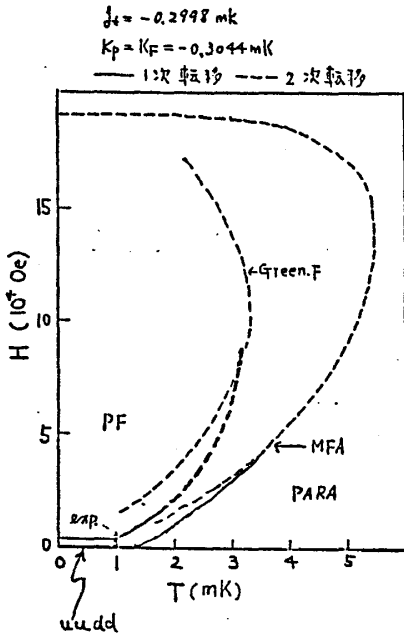


図 8

上に述べたことから $H_c^{MFA} \sim 0$ でなければならないが、これは $j_t \sim K_p \sim K_F$ の場合である。この時 $T_N^{MFA} \sim 1.25 \text{ mK}$ となり、真の $T_N \sim 1 \text{ mK}$ を説明できそうである。MFA による相図の具体例を図 8 に示す。高磁場での para \rightarrow PF 相の転移温度は実験とのずれが大きい。para \rightarrow PF 転移が 2 次転移ならば、我々は MFA より少し進んだ理論をもっている。我々は Tyablikov の decoupling による Green 関数法でこの転移温度を計算してみた。その結果は MFA 近似と共に図 8 に示される。

MFA と実験との一致がよくないのは近似のまずさにあって結局 bcc ^3He では図 2 に示した多体交換相互作用が支配的で、しかも 3 種類の相互作用がほぼ同じ大きさであると結論できそうである。ただし $e_3 > 0$ $\theta \sim 2 \text{ mK}$ が本当ならば bcc ^3He では 3-parameter モデルは成立たない。 e_3, θ の説得力ある実験が望まれる。

Appendix 1

$$\begin{aligned}
 e_2 &= 12J_1^2 + 9J_2^2 = 18J_3^2 + \frac{65}{2}(K_p^2 + K_F^2) \\
 e_3 &= 12J_1^3 + 9J_2^3 - 54J_3^3 - 108J_2^2(J_2 + J_3) - 108J_2^2J_3 \\
 &\quad - 162J_1^2(K_p + K_F) + 27J_2(J_2K_F + J_3K_p) + 270J_1(K_p^2 + K_F^2) \\
 &\quad - \frac{81}{2}(2J_2K_F^2 + (J_2 + J_3)K_p^2) - 378J_2K_pK_F - 189J_3K_F^2 \\
 &\quad - 27(K_p^3 + K_F^3) + 297K_pK_F^2 \\
 \theta &= 4J_1 + 3J_2 + 6J_3 \\
 B &= 4J_1^2 + 3J_2^2 + 6J_3^2 - 18J_1(K_p + K_F) + \frac{3}{2}J_2(K_p + 2K_F) \\
 &\quad + \frac{3}{2}J_3K_p - 21K_pK_F + \frac{21}{2}K_F^2
 \end{aligned}$$

- (1) A. Sawada et al. P. R. L. 投稿中
 (2) W. P. Halperin et al. J. Low Temp. Phys. 31 '78, 617.
 (3) H. Godfrin et al. P. R. L. 44 '80, 1965.
 (4) D. D. Osheroff et al. P. R. L. 44 '80, 792.
 (5) R. B. Kummer et al. P. R. L. 34 '75, 517.
 (6) T. C. Prewitt et al. P. R. L. 44 '80, 1699.
 (7) M. Roger et al. Rev. Mod. Phys. 55 '83, 1.
 (8) K. Iwahashi et al. J. Mag. Mater. 31-34 '83, 733.
 (9) T. Mamiya et al. P. R. L. 47 '81, 1504.
 (10) H. Fukuyama et al. J. Phys. Soc. J. 53 '84, 916.
 (11) W. P. Kirk et al. P. R. L. 27 '71, 392.

Appendix 2 Green 関数法と MFA

$$2 \langle S_z \rangle = P$$

$$\begin{aligned}
 (1) \frac{1}{P} &= \frac{1}{N} \sum_k \coth \frac{1}{2} \beta (\mu H + P [8(J_1 + 3(K_p + K_F)P^2)(1 - \gamma_{1k}) \\
 &\quad + 6(J_2 - (K_p + 2K_F)P^2)(1 - \gamma_{2k}) + 12(J_3 - \frac{1}{2}K_pP^2) \\
 &\quad (1 - \gamma_{3k})]) = \frac{1}{N} \sum_k \coth \frac{1}{2} \beta \epsilon_k \quad \text{--- Green F} \\
 (1)' \frac{1}{P} &= \coth \frac{1}{2} \beta (\mu H + P [8(J_1 + 3(K_p + K_F)P^2) \\
 &\quad + 6(J_2 - (K_p + 2K_F)P^2) + 12(J_3 - \frac{1}{2}K_pP^2)]) \quad \text{--- MFA} \\
 \gamma_{1k} &= \cos \frac{1}{2} k_x \cos \frac{1}{2} k_y \cos \frac{1}{2} k_z a \\
 \gamma_{2k} &= \frac{1}{3} (\cos k_x a + \cos k_y a + \cos k_z a) \\
 \gamma_{3k} &= \frac{1}{3} (\cos k_x a \cos k_y a + \cos k_y a \cos k_z a + \cos k_z a \cos k_x a)
 \end{aligned}$$

$T = T_N(H)$ で $k = (\frac{2\pi}{a}, 0, 0)$ に対応する $\epsilon_k \leq 0$ となる。

$$(2) \mu H + 16P(J_1 + 3(K_p + K_F)P^2) = 0$$

(1)-(2) 又は (1')-(2) で $T_N(H)$ を求める。

- (12) C. T. Van Degrift et al. P. R. L. 49 '82, 149.
 (13) D. D. Osheroff et al. Phys. Lett. 77A '80, 458.
 (14) K. Iwahashi et al. J. Phys. Soc. J. 50 '81, 2508.
 (15) K. Iwahashi et al. J. Phys. Soc. J. 53 '84, 3088.
 (16) Y. Nagaoka 固体物理講義ノート「量子固体」.