

固体ヘリウムにおける核スピン秩序

東大・教養 内 海 研 一

最近実験技術の進歩により mK 領域での固体ヘリウムの実験が行われるようになってきた。以下において 100 mK 以下における BCC 固体 ^3He の実験及び理論の現況について紹介する。

§ 1. Exchange Hamiltonian

実験^{1)~5)}によると 100 mK 以下の低温においては、固体 ^3He の熱力学的性質は、核スピン $\frac{1}{2}$ を持ったヘリウム原子の交換相互作用により決定され则认为られる。交換相互作用は次のハミルトニアンで与えられる。⁶⁾

$$\mathcal{H}_{\text{ex}} = - \sum_p J(p) T(p) \quad (1)$$

ここで P は粒子間の交換を表わし、 $T(p)$ は P という粒子間の交換をひきおこす演算子である。 $T(p)$ はスピン演算子を使って表わされて、

$$\begin{aligned} T(12) &= - \left(2 \vec{S}_1 \cdot \vec{S}_2 + \frac{1}{2} \right) \\ T(12 \cdots n) &= \frac{1}{2} \{ T(12) T(13) \cdots T(1n) + \text{h.c.} \} \end{aligned} \quad (2)$$

となる。二体、三体の交換は $\vec{S}_i \cdot \vec{S}_j$ で表わされるが、四体の交換には更に、 $(\vec{S}_i \cdot \vec{S}_j)(\vec{S}_k \cdot \vec{S}_l)$ という項が出てくる。

§ 2. 実 験

Exchange hamiltonian (1) にゼーマンエネルギー

$$\mathcal{H}_z = - 2 \mu \vec{H} \cdot \sum_j \vec{S}_j \quad (3)$$

$$\mu = 7.82 \times 10^{-5} \text{ mK/G}$$

を加えたものを高温展開して，熱力学的諸量の表式を求めると，

$$\begin{aligned}\frac{C_v}{R} &= \beta^2 J(2,0) - \beta^3 J(3,0) + \dots \\ &\quad - (\beta \mu H)^2 \{ 2 + \beta J(1,2) - \dots \} + \dots \\ \frac{P V_m}{R} &= \frac{1}{2} \beta \frac{J(2,0)}{k_B} \cdot \frac{\partial \ell_n J(2,0)}{\partial \ell_n V} - \frac{1}{6} \beta^2 \frac{J(3,0)}{k_B} \cdot \frac{\partial \ell_n J(3,0)}{\partial \ell_n V} + \dots \\ &\quad - (\beta \mu H)^2 \left\{ \frac{1}{6} \cdot \frac{J(1,2)}{k_B} \cdot \frac{\partial \ell_n J(1,2)}{\partial \ell_n V} - \dots \right\} + \dots \\ \frac{R}{\chi V_m} &= \frac{k_B^2}{\mu^2} \left\{ T + \frac{1}{3} \cdot \frac{J(1,2)}{k_B} + \dots \right\}\end{aligned}$$

ここで，

$$N J(2,0) = \langle \mathcal{J}_{ex}^2 \rangle$$

$$N J(3,0) = \langle \mathcal{J}_{ex}^3 \rangle$$

$$N J(1,2) = 3 \langle \mathcal{J}_{ex} \mathcal{J}_z^2 \rangle / (\mu H)^2$$

$$\beta = 1/k_B T$$

$$V_m: \text{ molar volume}$$

である。実験で測定されているのは，比熱の $J(2,0)$ の項^{1),2)} $J(3,0)$ の項²⁾ 圧力の $J(2,0)$ の項³⁾ $J(1,2)$ の項⁴⁾ 帯磁率の $J(1,2)$ の項⁵⁾ である。このうち $J(2,0)$ の測定はコンシステントであって数値は図1のようになる。 $J(1,2)$ については，まだ確定的な値は得られていないが，正であることは確かなようである。 $J(3,0)$ については，“正であるようだ”，ぐらいのことしかわかっていない。

この他の実験として，融解曲線上でエントロピーを測定した実験⁸⁾ があって，1.1 mK の点でエントロピーが大きく変化している。これは固体内で，低温側で核スピンの秩序状態になっているためと考えられている。また，静磁場をかけた時の転移温度の変化をみた実験⁹⁾ がある。それによると，磁場が小さい時，転移温度は磁場と共に減少するが $\sim 6 \times 10^3$ G 以上の磁場がかかると，転移温度は磁場と共に増大する，という奇妙な振

舞を見せる。ここで注意すべきことは、磁場が $6 \times 10^3 \text{ G}$ のときゼーマンエネルギーは $\sim 0.5 \text{ mK}$ となって ((3) 式参照), 交換相互作用エネルギーと同程度になるということである。

§ 3. Exchange Hamiltonian と実験との比較

今 Exchange hamiltonian を

$$\mathcal{H}_{\text{ex}} = 2 J_1 \sum_{(ij)}^{(\text{nn})} \vec{s}_i \cdot \vec{s}_j + 2 J_2 \sum_{(ij)}^{(\text{nnn})} \vec{s}_i \cdot \vec{s}_j \quad (4)$$

ここで第一項は, n.n.pair についての和

第二項は, n.n.n.pair についての和

とすると, $J(2,0)$, $J(1,2)$, $J(3,0)$ の表式は次のようになる。

$$\begin{cases} J(2,0) = 3 J_1^2 + \frac{9}{4} J_2^2 \\ J(1,2) = 12 J_1 + 9 J_2 \\ J(3,0) = -3 J_1^3 + 27 J_1^2 J_2 - \frac{9}{4} J_2^3 \end{cases} \quad (5)$$

またネール点は, $J_2 = 0$ のときには厳密に,¹⁰⁾

$$k_B T_N = 2.748 J_1$$

$J_2 \neq 0$ のときは分子場近似で,

$$k_B T_N = 4 J_1 - 3 J_2$$

である。

まず $J_2 = 0$ として実験と比較する。 $J(2,0)$ の測定から J_1 を決めると, それから $J(1,2)$, $J(3,0)$, T_N がわかってそれらと実験値とを比較することができる。

$J(1,2)$ は実験値より大きく出る。⁴⁾ $J(3,0)$ は符号が逆に出る。²⁾ T_N は 2 mK となって実験値の約二倍となる。即ち (n.n.) 相互作用のみを含んだハイゼンベルグハミルトニアンで固体 ^3He を理解することはできない。

次に, $J_2 \neq 0$ として実験と比較してみる。いくつかやり方がある。

1) $J(2,0)$ と, $J(1,2)$ を合わせると, $J_1 > 0$, $J_2 < 0$ としなければならないが,

こうすると、 $J(3,0)$ が負となること、 T_N が 2mK 以上になること、二点で実験と合わない。

2) $J(2,0)$ とネール点を合わせると、 $J(1,2)$ が実験と合わない。

その他 (4) 式のハミルトニアンで実験を解釈しようとする試みはいくつかあるが、¹¹⁾どれも満足のゆくものではない。

また、(1) で四体の交換まで考えて、Exchange hamiltonianとして (4) 式にスピン四乗項をつけ加えたもので、実験を説明しようとする試みがあるが、その際には四体交換相互作用エネルギーを二体交換相互作用エネルギーと同程度にとらなければならないようになってしまってあまり説得力がない。

即ち、今問題なのは、(1) 式でどの項までとれば固体 ^3He の性質を説明できるか、である。実験の側から見ると、まだ確定的な結論は得られていないが、nearest neighbour 相互作用のみを含んだハイゼンベルグハミルトニアンでは不十分である。この時、実験的に信頼できる多くのデータが必要となるが、今のところ信頼できるデータの数は不足している。

§ 4. Exchange Energy

の計算値

ここでExchange Energyの計算について見てみる。今一番信頼のおける計算は McMahan, Guyer の計算¹²⁾で、結果は図 1 に示してある。三つの実線は一体の波動関数をGaussianとしたとき、そのパラメーターのとり方の違いによる。実験値とはかなりズレている。又、四体交

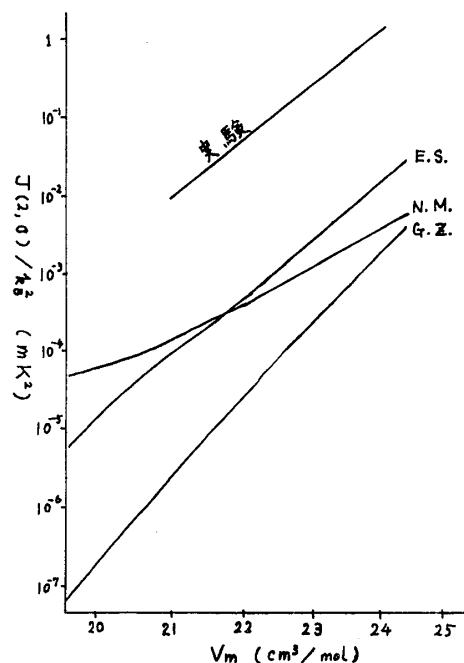


図 1

換相互作用まで計算した例は三つあって、それらを表 1 にあげておく。これらはいずれも実験を説明するのに十分でない。表 1 で、MG は McMahan (Guyer¹²⁾ , MW は McMahan Wilkins¹³⁾ でいずれも基底状態の波動関数の重なりから計算したもの、UI は Utsumi Izuyama で 3 つのパラメーターを含むホッピングモデルにもとづく計算である。

表 1

	M. G.	M. W.	U. I.
$V_m (cm^3/mol)$	24.4	24.0	24.2
$J_1 (mK)$	0.049	0.83	0.648
J_2/J_1	-1.3×10^{-2}	1.2×10^{-1}	5.1×10^{-1}
K_α/J_1			2.5×10^{-3}
K_β/J_1	1.1×10^{-3}	5.4×10^{-2}	2.6×10^{-3}

§ 5. 核スピン秩序¹⁴⁾

以上見てきたように、実験的にも、理論的にも、交換相互作用エネルギーの値は確定していないので、以後これらをパラメーターとして扱って、低温においてどのようなスピンオーダーリングが可能であるかを見てみる。ハミルトニアンは、

$$\begin{aligned}
 \mathcal{H} = & 2J_1 \sum_{(ij)}^{(nn)} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j + 2J_2 \sum_{(ij)}^{(nnn)} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j \\
 & + \sum_{\gamma \in \alpha\beta} 2K_\gamma \sum_{(ijk\ell)} \epsilon_\gamma [(\vec{S}_i \cdot \vec{S}_j)(\vec{S}_k \cdot \vec{S}_\ell) \\
 & + (\vec{S}_i \cdot \vec{S}_j)(\vec{S}_k \cdot \vec{S}_\ell) - \lambda_\gamma (\vec{S}_i \cdot \vec{S}_k)(\vec{S}_j \cdot \vec{S}_\ell)]
 \end{aligned} \tag{6}$$

ここで、第一項は nearest neighbour pair についての和、第二項は 2nd, neighbour pair についての和、第三項は α, β という二種類の 4- スピンクラスターについての和である。 α, β は図 2 に示した。又 λ_γ は 1 のオーダーの量である。¹⁴⁾ 交換相互作用エネルギーのだいたいの目安は、 J_1, J_2 は mK のオーダー、 K_α, K_β は J_1 より 1 ケタ以上小さいと考える。又、 $J_1, J_2, K_\alpha, K_\beta$ はすべて正と考える。

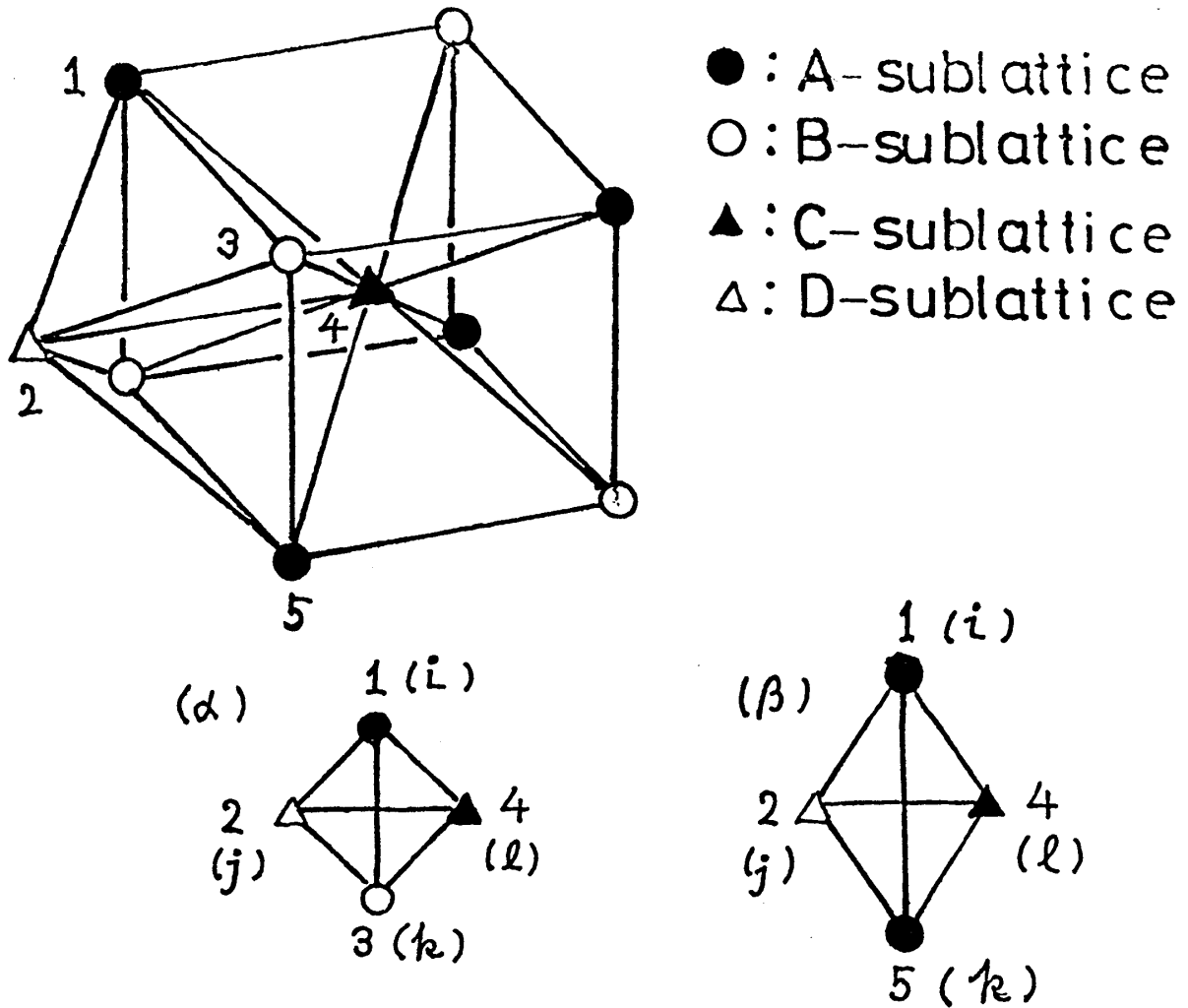


図 2

(6) 式のハミルトニアンを分子場近似で扱い、4つのサブラティスに分ける範囲内で可能なスピン秩序は、5種類に限られることが、石川、岡田両氏によって示されている。即ち、Ferro, NAF = Normal Antiferro (第一種 AF), SCAF = Simple Cubic Antiferro (第二種 AF) の $\perp$ と $\parallel$, WF = Weak Ferro, である。このうち、Ferro は $J_1 > 0$ のときは考えなくてよい。又、WF は $2J_1 > 3(K_\alpha + K_\beta)$ のときは考えなくてよい。以下ではこのような場合を考えて、NAF, SCAF $\perp$, SCAF $\parallel$ のみを考える。それぞれのスピンの向きは、図3に示した。分子場近似で各相でのフリーエネルギーを計算して、パラメーターがどのような値をとったとき、系は温度と共にどのように変化するかを調べた。結果は図4に示した。ここで (P $\parallel$ SIN) という記号は、高温でパラ状態、低温でNAF, その中間の温度領域でSCAF相となり、転移の性質は、PとSの間の転移が

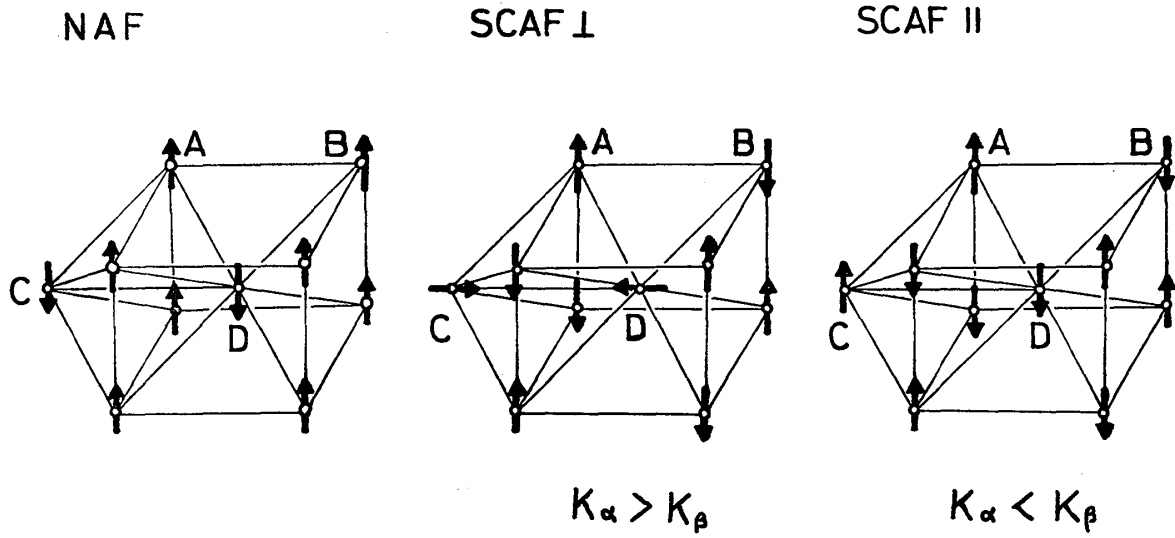


図 3

二次，S と N との間の転移が一次であることを示している。他も同様である。また，単に S と書いたのは， $K_\alpha > K_\beta$ のときは $S_\perp$ ， $K_\alpha < K_\beta$ のときは $S_\parallel$ の意味である。又，図 4 中のパラメーターは以下の如くである。

$$J_1' = \frac{J_1}{J_2}, \quad \kappa_S = \frac{k_S}{6J_2}, \quad k_N' = \frac{k_N}{J_2}$$

$$k_S = \begin{cases} 24(K_\alpha \lambda_\alpha - K_\beta \lambda_\beta) & ; K_\alpha > K_\beta \\ 24(K_\alpha \lambda_\alpha - K_\beta \lambda_\beta) - 48(K_\alpha - K_\beta) & ; K_\alpha < K_\beta \end{cases}$$

$$k_N = 24(K_\alpha \lambda_\alpha + K_\beta \lambda_\beta) - 48(K_\alpha + K_\beta)$$

以上の計算では、静磁場はかけていないが、磁場をかけた時の系の磁氣的性質については興味のある実験⁹⁾がある。これに対する理論的説明はいくつか出されているが、^{15)~17)}が決定的なものはない。例えば Sokoloff, Widom のものは零点 vacancy を仮定している点、Hetherington, Willard のものは四体交換エネルギーの値の取り方、Johnson, Cohen のものは J_1 をフェロ的にとっている点、にそれぞれ問題が残る。

図4でわかるように、実際の、 $\text{BCC } ^3\text{He}$ でも、 $\text{SCAF} \perp$ 或は $\text{SCAF} \parallel$ 相が現れる可能性は十分ある。そこで、どのような秩序状態にあるかを実験的に決める手がかりとなるためにと、スピン波の frequency を計算してみた。その

結果 $\text{SCAF} \perp$ 、 $\parallel$ 相ではオプティカルモードが存在するが、NAF 相では、オプティカルモードがない、という結果が得られた。 $q \rightarrow 0$ におけるオプティカルモードフリークエンシーは、

$$\omega_0 = 12 (K_\alpha - K_\beta)^{1/2} \left\{ \frac{2}{3} (3J_2 - 2J_1) + 2K_\alpha \lambda_\alpha - K_\beta \lambda_\beta \right\}^{1/2}$$

for $\text{SCAF} \perp$

$$\omega_0 = 12 (K_\beta - K_\alpha)^{1/2} \left\{ \frac{2}{3} (3J_2 - 2J_1) - 2K_\alpha + 2K_\beta + 2K_\alpha \lambda_\alpha - K_\beta \lambda_\beta \right\}^{1/2}$$

for $\text{SCAF} \parallel$,

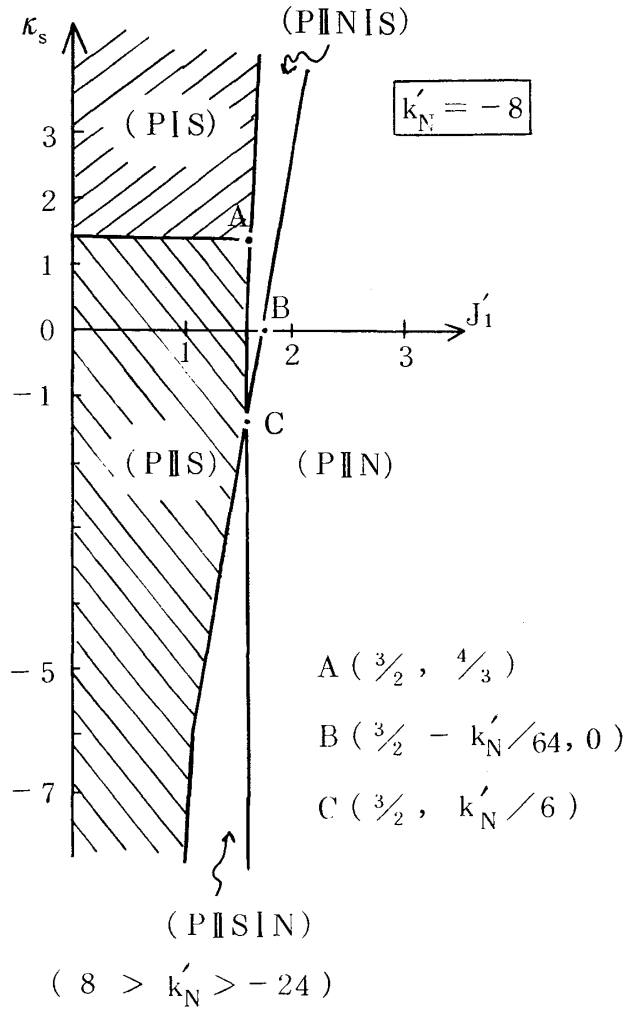


図 4

となる。 $3J_2 - 2J_1 \sim 0.4 \text{ mK}$, $K_\alpha - K_\beta \sim 3 \times 10^{-3} \text{ mK}$ としたとき $\omega_0 \sim 7 \text{ Mc/s}$ となる。

§ 6. 問 題 点

以上のことから、問題点をまとめると、次のようになる。

実験に関して

- ① $J(1, 2)$, $J(3, 0)$ の信頼できる値を V_m の広い範囲にわたって得ること。
- ② $T-H$ 平面上での磁気的な相図の決定。

このことはスピン波のオプティカルモード、或は比熱、帯磁率の測定から情報が得られると思われる。但し、比熱、帯磁率の、SCAF 相と NAF 相との差異は質的なものではなく、量的なものであろう。

理論に関して

- ① Multiple Exchangeを含めた、Exchange Energy の計算。
これらの量を計算するには、量子固体であるという特性を十分に取り入れた方法で行う必要がある。
- ② $T-H$ 平面上の相図の説明。

参 考 文 献

- 1) D. S. Grey wall, Phys. Rev. Letters, **37**, 105 (1976), Phys. Rev., **B-15**, 2604 (1977).
- 2) J. M. Dundon and J. M. Goodkind, Phys. Rev. Letters, **32**, 1343 (1974).
- 3) M. F. Panczyk and E. D. Adams, Phys. Rev., **187**, 321 (1969).
- 4) W. P. Kirk and E. D. Adams, Phys. Rev. Letters, **27**, 392 (1971).
- 5) W. P. Kirk, E. B. Osgood and M. Garber, Phys. Rev. Letters, **23**, 833 (1969).
- 6) D. J. Thouless, Proc. Phys. Soc., **86**, 893 (1965).
- 7) R. A. Guyer, Phys. Rev., **A9**, 1452 (1974).
- 8) W. P. Halperin, C. N. Archie, F. B. Resmussen and R. C. Richardson, Phys. Rev. Letters, **34**, 718 (1975).

- 9) R. B. Kummer, E. D. Adams, W. P. Kirk, A. S. Greenberg, R. M. Mueller, C. U. Britton and D. M. Lee, Phys. Rev. Letters, **34**, 517 (1975).
- 10) G. A. Baker, Jr., H. E. Gilbert, J. Eve and G. S. Rushbrooke, Phys. Rev., **164**, 800 (1967).
- 11) J. D. Johnson and E. G. D. Cohen, Phys. Rev. B12, 297 (1975).
- 12) A. K. McMahan and R. A. Guyer, Phys. Rev., A7, 1105 (1973).
- 13) A. K. McMahan and J. W. Wilkins, Phys. Rev. Letters, **35**, 376 (1975).
- 14) K. Utsumi and T. Izuyama, Prog. Theo. Phys., **58** (1977)
- 15) J. B. Sokoloff and A. Widom, Phys. Rev. Letters, **35**, 673 (1975).
- 16) J. H. Hetherington and F. D. C. Willard, Phys. Rev. Letters, **35**, 1442 (1975).
- 17) J. D. Johnson and E. G. D. Cohen, Phys. Rev. B13, 2231 (1976).

B. C. C. 固体 He^3 における

4 体交換相互作用モデルでの磁気秩序

横浜市立大 石 川 幸 志
岡 田 勇

固体 He^3 中の He^3 原子は、量子効果としての大きな零点振動によってその位置を交換し、その結果 He^3 の核スピン間に最隣接間で負の交換相互作用が働らく。固体 He^3 に対する現在までの実験結果は以下の三点で、二粒子交換のみを考慮する通常の Heisenberg モデルでは説明できない。

1. 高温展開の理論値と実験値を比べて、求めた exchange parameter J の値からきめた T_N は、実験の T_N より高い。
2. 他の量の高温展開から決めた J の値は、磁場 H をかけた場合の magnetic pressure $P(H)$ の磁場依存性を説明できない。
3. 0.4 テスラ以上の磁場 H による転移温度 T_N の変化。¹⁾ $-H$ と共に T_N は一次で増加する。この変化は Heisenberg モデルでは磁場によりスピンがそろう効果である。

$J=0$ のスピン系の比熱が最大になる温度は、 $H=1.5 T_N$ (H はテスラの単位、温