

多体交換相互作用が創る 固体ヘリウム3薄膜の磁性

理化学研究所 桃井 勉
青山学院大学理工学部 久保 健

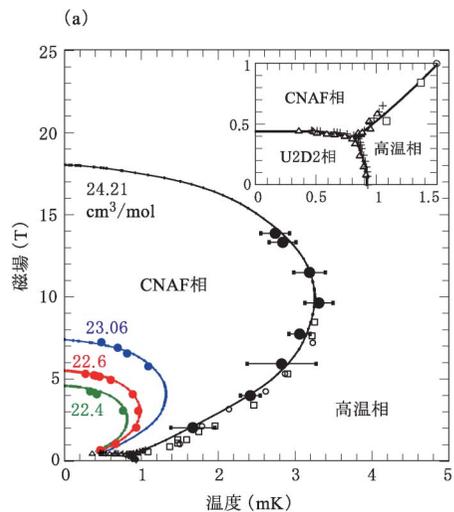
§1 はじめに

ヘリウム3原子は、電子軌道が閉殻であるため、電子スピンによる磁性を示さない。そのため、ヘリウム3原子が低温で結晶化した固体ヘリウム3の磁性は長く知られていなかった。しかし、その後、磁性転移が実験で検出されたことにより、ヘリウム3原子核が持つ核スピン($S=1/2$)間に固体ヘリウム固有の多体スピン交換相互作用が働くことが明らかになり、固体ヘリウム3の示す極低温における磁性の理解が、実験および理論の両面から大きく進展してきた。この解説では、これらの研究を振り返りつつ、多体スピン交換相互作用と近年の2次元固体ヘリウム3の磁性研究の進展について述べたい。

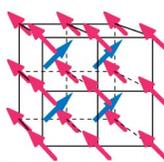
ヘリウム3原子は、質量が軽いために量子揺らぎが強く、常圧では絶対零度まで固化しない。しかし、圧力をかけると約3 MPaから10 MPaの圧力の範囲でbcc構造に固化し、さらに、高圧下では、hcp構造の固体になる。このように、固体ヘリウムは、圧力なしでは融解してしまう量子揺らぎが強い量子固体である。量子揺らぎが強いため、固体結晶中の原子が他の原子と位置を入れ替わる(置換する)量子トンネルプロセスが存在し、この置換プロセスが原子の核スピン間のスピン相互作用を生むことになる。

1973年にHalperinら¹⁾により、bcc固体ヘリウム3が温度約1 mKで常磁性相から反強磁性相へと1次転移することが発見されて以来、盛んにその磁性の研究が行われてきた。その結果わかった相図の概略を第1図に示す。反強磁性相は、

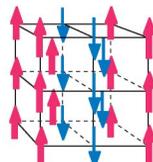
磁場をかけると約0.4 Tの磁場で、磁化の大きな異なる反強磁性相へと転移する。Osheroffら²⁾のNMRの実験により、低磁場相は、第1図(c)に示すように(100)面内のスピンの平行に整列し、2層



(b) CNAF構造



(c) U2D2構造



第1図

(a) BCC格子固体ヘリウム3の磁場中磁気相図⁴⁾。高温相は無秩序相、CNAF相は高磁場反強磁性相、U2D2相は低磁場反強磁性相を表わす。
(b) CNAF相におけるスピン秩序構造。bcc格子のA, B副格子構造を持つ反強磁性状態が磁場方向に傾く。
(c) U2D2相におけるスピン秩序構造。(100)面内でスピンのそろい、(1,0,0)方向にup, up, down, downと周期的に並ぶ。

ずつ交互に反平行に向いた U2D2 構造を持つことが明らかになった。これに対し高磁場相は、第 1 図(b)に示すように、最近接格子点が反対方向を向く反強磁性秩序のスピンの磁場方向に傾いた状態であり、CNAF 状態と呼ばれている。相転移の性質も調べられており、U2D2 相と常磁性相との間および U2D2 相と CNAF 相の間は 1 次相転移である。これに対し、CNAF 相と常磁性相との間の相転移は三重点近傍では 1 次転移であるが、高磁場側では 2 次転移である。これらの振る舞いは、通常の高ゼンベルグ模型では説明できない(通常の高ゼンベルグ模型の場合、磁場中に磁性相は一つしか存在せず、また有限温度相転移は 2 次転移である)。これらの実験事実を良く説明したのが、多体スピン交換模型である。

固体ヘリウム 3 は、量子揺らぎが非常に強い固体である。そのため、結晶中の原子がその位置を他の原子と入れ替わる量子的な置換プロセスが多く存在し、数 mK という高いエネルギースケールを持つ。この原子の置換プロセスの強さは、周りにある原子のハードコア斥力からの影響を受けるため、置換する原子の幾何学的な配置に大きく左右される。特に、2 個の原子が入れ替わるプロセスよりも、3 個または 4 個の環状に並んだ原子が入れ替わる巡回置換プロセスの寄与が大きいことが、経路積分法によるシミュレーション³⁾により示された。これは、3 以上の複数個の原子が巡回的に入れ替わる方が、周りの原子からのハードコア斥力をうまく避けることができるという幾何学的な構造からくるものである。同様に、5 個、6 個の原子の巡回置換プロセスも存在するが、巡回置換に寄与する原子数が多くなるとかえってその発生頻度は下がってくる。これら空間配置の置換を記述する有効ハミルトニアンは、

$$H = -\sum_n J_n \sum_{(r_1, \dots, r_n)} P_n^{(R)} \quad (1)$$

となる。ここで、 $P_n^{(R)}$ は (r_1, r_2, \dots, r_n) の位置に環状に並んだ n 個の粒子座標の巡回置換演算子を表わす。また、 $2J_n$ は、 n 個の粒子の巡回置換に対し対称な状態と反対称な状態とのエネルギー差となっている。一般に、位置の波動関数に節のない対称な状態の方がエネルギー的に得なため、 $J_n > 0$

となる⁵⁾。

ここまでは、位置の置換しかハミルトニアンに出てきていないように見えるが、フェルミ粒子系の位置とスピンを含む全波動関数 Ψ が 2 粒子の置換について反対称になっていることを用いると、位置の置換は n 個の粒子が持つスピン自由度の巡回置換演算子 $P_n^{(\sigma)}$ を用い、 $(P_n^{(R)})^{-1}\Psi = -(-1)^n P_n^{(\sigma)}\Psi$ と記述される。ここで、符号は、 n 個の粒子の巡回置換は n が偶数のとき奇置換、 n が奇数のとき偶置換であることによる。この関係から、巡回置換による相互作用は全てスピン自由度だけで表わされ、全有効ハミルトニアンは、

$$H = \sum_n (-1)^n J_n \sum_{(r_1, \dots, r_n)} P_n^{(\sigma)} \quad (2)$$

となる。ただし、前述の通り $J_n > 0$ である。スピンの巡回置換演算子はいずれも多体のスピン演算子で記述されることから、この理論モデルは、多体スピン交換模型と呼ばれる。以下では $P_n^{(\sigma)}$ を単に P_n と表わす。

巡回置換演算子は、具体的には、

$$P_2 = \frac{1}{2} (\sigma_1 \cdot \sigma_2 + 1)$$

$$P_3 + P_3^{-1} = \frac{1}{2} (1 + \sigma_1 \cdot \sigma_2 + \sigma_2 \cdot \sigma_3 + \sigma_3 \cdot \sigma_1)$$

$$P_4 + P_4^{-1} = \frac{1}{4} \left\{ 1 + \sum_{1 \leq i < j \leq 4} \sigma_i \cdot \sigma_j + (\sigma_1 \cdot \sigma_2) (\sigma_3 \cdot \sigma_4) + (\sigma_1 \cdot \sigma_4) (\sigma_2 \cdot \sigma_3) - (\sigma_1 \cdot \sigma_3) (\sigma_2 \cdot \sigma_4) \right\}$$

と書ける。 σ_i^α ($\alpha = x, y, z$) は位置 r_i にある粒子のスピンに対するパウリ演算子である。見てわかる通り、2 体および 3 体の置換演算子は、高ゼンベルグ型のスピン交換相互作用となる。これらはハミルトニアン [式(2)] に異なる符号で入ってくることから、2 体交換は反強磁性的スピン相互作用を与えるのに対し、3 体交換は強磁性的スピン相互作用を与える。4 体交換相互作用にはスピン 4 個の積が含まれることに注意してほしい。固体ヘリウム 3 では、3 体の置換演算子からの寄与の方が 2 体からの効果より大きいことから、全体として有効的 2 体スピン相互作用は、強磁性相互作用となる。bcc 固体ヘリウム 3 における結合定数は、たとえば、経路積分モンテカルロ計算³⁾から、 $J_2 = 0.46$ mK, $J_3 = 0.19$ mK, $J_4 = 0.27$ mK と、見積

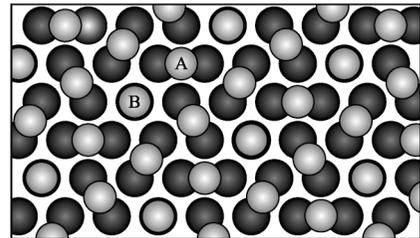
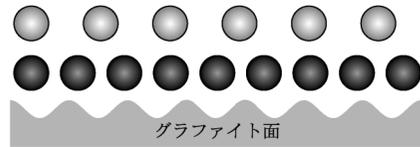
もられている。この場合、幾何学的に異なる6個の3体項から一つの2体相互作用が出てくるために、2体交換と3体交換からの寄与を合わせた有効的な2体相互作用の結合定数は、 $J_{\text{eff}} = J_2 - 6J_3 = -0.68 \text{ mK}$ となっている。

Rogerら⁶⁾は、bcc格子上の多体スピン交換模型のうち有効2体相互作用(J_{eff})と4体相互作用(J_4)だけを考慮するモデルに分子場理論を適用して、実験で得られるU2D2相およびCNAF相の相図の振る舞いをほぼ定量的に再現した。分子場近似では、CNAF相と常磁性との間の相転移の性格だけは説明できなかったが、スピンを古典的に扱い熱的な揺らぎを取り入れれば、相境界に三重臨界点が存在することが説明できる⁶⁾。しかし、量子効果もとりいれて実験結果を定量的に説明することはまだできていない。

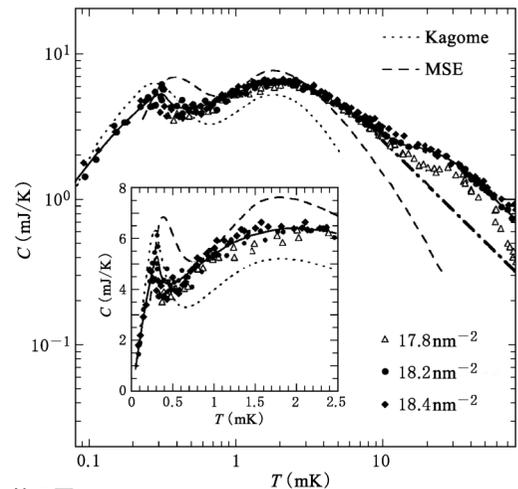
近年、ヘリウム3の2次元固体が示す磁性の研究が盛んに行われてきた。これは、グラファイトシート上に吸着させて造られた固体ヘリウム3薄膜の磁性である。2次元系では、空間次元が低いので、スピンの量子性および磁気フラストレーション効果が磁性に大きな影響を与える。以下に、2次元固体ヘリウム3薄膜が示す磁性の振る舞いについて、最近の研究を含め、解説したい。

§2 2次元固体ヘリウム3薄膜

グラファイト面上に吸着されたヘリウム3原子は、その面密度を増加させると、グラファイトの格子周期と整合した三角格子の整合固体を形成する⁸⁾。さらに面密度を増加させると、粒子間ハードコア斥力により安定化した非整合固体へと転移する。特に、この吸着層状固体の内、ヘリウムが2層並んで固化した時の2層目のヘリウム固体相の磁性が実験で扱いやすいことから、よく研究されてきている。この第2層の三角格子固体相は、周期が下地の第1層と整合な時、その面密度比から4/7相と呼ばれる(第2図参照)。第2層ヘリウムの面密度をさらに上げると、その周期が第1層の周期からずれた非整合固体が有限の面密度の範囲で実現する。これら固体ヘリウム3薄膜の磁性の面密度依存性も、注目を集めてきた。



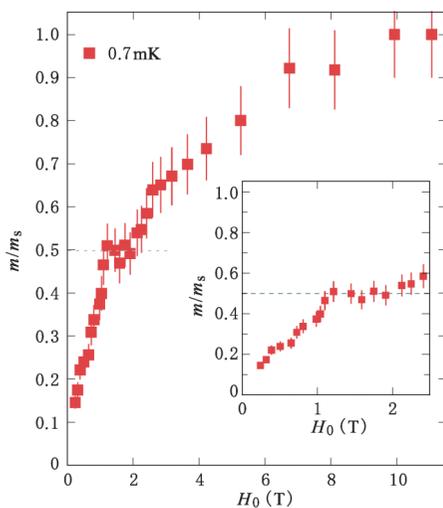
第2図
グラファイト面上に吸着されたヘリウム固体薄膜。第2層整合固体4/7相では、第1層がグラファイトに対し非整合固体を形成し、その上の第2層が第1層に対し粒子数比4/7の整合固体を形成する。(上)断面図。(下)上から見た図。Elsler¹¹⁾により提案された第1層(黒)と第2層(グレー)のヘリウム原子の配置。



第3図
固体ヘリウム3薄膜第2層の整合固体4/7相におけるスピン比熱⁹⁾。温度2 mK 辺りと0.2 mK 辺りに2つのピークを持つ。

第2層の整合固体4/7相は、ヘリウム原子が固化する温度とスピン相関が形成されスピンエントロピーが放出される温度がよく分離していることから、その磁性の研究が盛んに行われてきた。極低温まで測定されたスピン比熱(第3図)は、温度2 mK と0.2 mK 辺りに二つのピークを持ち、低

温において大きな比熱を示す⁹⁾。最低温度領域の温度依存性は、2次元反強磁性体に予想される T2 乗則には乗らず、むしろ T 線形則に乗るようにすら見える。また、帯磁率は、極低温まで有限になっており、スピン励起にギャップが存在しないことを示す¹⁰⁾。この吸着第2層は、第2図に示すようにヘリウム原子が第1層原子直上からずれた位置にある A 原子と第1層のヘリウム原子の真上にある B 原子の2種類からなると当初思われていた。A 原子だけを見るとカゴメ格子を作るため、固体ヘリウム3第2層はカゴメ格子磁性体を実現しているのではないかと提案され¹¹⁾、注目を集めた。しかし、最近の高木によるシミュレーションの結果では、2層目の原子位置には異なる2種類の位置があるが、それらは第2図の B 原子のように1層目の原子の真上ではなく少しずれた位置にある¹²⁾(ただし、この構造を直接観測し確認した報告は今日までまだない)。また、測定された比熱から求めたエントロピーが全てのサイトのスピン自由度を含んでいることから⁹⁾、A 原子のスピンと B 原子のスピンの間にはスピン相互作用が存在することが確認された。さらに、最近の磁化測定の結果、飽和磁化の 1/2 の磁化率で磁化曲線に小さなプラトー構造が観測されている¹³⁾(第4図参照)。

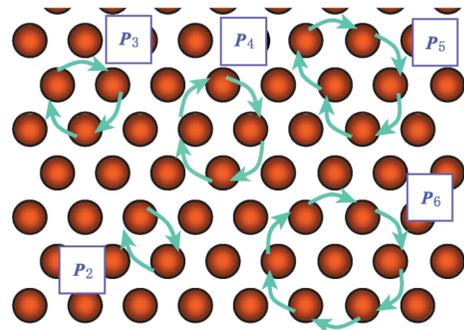


第4図
固体ヘリウム3 薄膜第2層の整合固体 4/7 相における磁化曲線¹³⁾。

A 原子と B 原子を同等に扱い一様な2次元三角格子を組むとしても、帯磁率および比熱の測定結果から、その磁性は単純な三角格子上のハイゼンベルク模型では記述できない系であることがわかる。スピン比熱のダブルピーク構造は、三角格子ハイゼンベルク模型の比熱とは大きく異なる。磁化プラトーが飽和磁化の 1/2 に現れることもハイゼンベルク模型では説明できない。また、1層だけの三角格子固体ヘリウム3 薄膜の経路積分法によるシミュレーション¹⁴⁾からは、2次元系においても強い3体および4体のスピン交換相互作用が存在することが示されている。3体の巡回置換相互作用からの寄与が強磁性的な2体交換相互作用として記述されることから、この系は最近接スピン間の強い強磁性的な2体相互作用と、それと競合する4体相互作用が存在する系であると思われる¹⁵⁾。また、5体および6体スピン相互作用も無視できない強さで存在することが示唆されている¹⁶⁾。これら全ての相互作用を含む有効スピンハミルトニアンは、

$$H_{\text{eff}} = J \sum_{\langle i,j \rangle} P_2 + J_4 \sum_{\triangleleft} (P_4 + P_4^{-1}) - J_5 \sum_{\triangle} (P_5 + P_5^{-1}) + J_6 \sum_{\hexagon} (P_6 + P_6^{-1}) - h \sum_i S_i^z$$

と記述される。最後の項は、磁場によるゼーマン項を表わす。各相互作用が働くサイトは、第5図を参照。ここで、有効的2体相互作用 J は、2体交換と3体交換からきており、 $J = J_2 - 2J_3$ で与え



第5図
三角格子を組む2次元固体ヘリウム3における多体スピンの巡回置換プロセス。

られる。第2層の比熱および帯磁率の高温における温度依存性は、多体交換相互作用を用いると、よく説明できる。たとえば、最近の相互作用定数のフィッティング¹⁶⁾からは、 $J = -2.8$, $J_4 = 1.4$, $J_5 = 0.45$, $J_6 = 1.25$ (mK) というような評価が得られている。

整合固体 4/7 相からヘリウム面密度を増やしていくと、有限の面密度領域で、固体相が持続する。この相では、不整合固体が実現していると思われる⁸⁾(ただし、この相の原子配置構造を直接観測した報告はまだなく、その構造はよくわかっていない)。整合固体 4/7 相で反強磁性的振る舞いを示していた Curie-Weiss 温度が、不整合固体相では、面密度の上昇とともに小さくなり、Weiss 温度の符号が変わり強磁性的な振る舞いを示すようになる。つまり、系に含まれるスピン相互作用の内、強磁性相互作用の比率が強くなっていく振る舞いを見せている。

この相互作用の強い面密度依存性には、二つの原因が考えられる。一つは、多体交換相互作用そのものに存在する強い密度依存性である。これは、ヘリウム原子にハードコア斥力が存在し、環状巡回置換相互作用が周囲の原子の幾何学的な配置に大きく影響されることによる。面密度が上がり周りの原子との距離が短くなるにつれ、全体的に巡回置換プロセスは起こりにくくなるが、相対的には3体交換相互作用の比率が大きくなると思われる。その結果、面密度を上げるにつれて、3体交換からくる強磁性的な2体スピン相互作用の比率が大きくなる。もう一つの無視できない効果として、わずかながら吸着している液体状の第3層からの寄与がある。第3層がフェルミ液体として振る舞い、第2層と第3層原子の入れ替わりプロセスを介して、第2層のスピン間に RKKY 相互作用が働き、全体として有効的な強磁性相互作用が生じるものと思われる。

§3 三角格子上の 多体交換模型が示す磁性

3.1 J - J_4 模型：相図

2次元固体ヘリウム3を三角格子上の多体交換

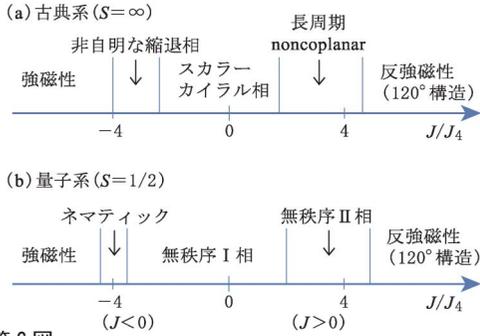
模型で記述する場合、さまざまな多体相互作用がある中で、最近接スピン間の強磁性的な2体相互作用(J)と、それと競合する4体相互作用(J_4)が重要になってくる。これらの相互作用を含む最小モデルのハミルトニアンは、

$$H_{\text{eff}} = J \sum_{\langle i,j \rangle} P_2 + J_4 \sum_{\square} (P_4 + P_4^{-1})$$

と記述される。この模型の Curie-Weiss 温度は、 $\Theta = -(J + 3J_4)$ となることから、強磁性的な2体スピン相互作用($J < 0$)に対し、4体相互作用($J_4 > 0$)が反強磁性的な相互作用として振る舞うことがわかる。2次元固体ヘリウム3は、2体相互作用($J < 0$)と4体相互作用($J_4 > 0$)が強く競合したフラストレートスピン系となっている。また、この J - J_4 模型は、2体相互作用が反強磁性($J > 0$, $J_4 > 0$)のパラメータ領域では、有機絶縁体などの相関の弱いモット絶縁体におけるスピン自由度を記述する有効モデルとしても用いられる。この場合、4体スピン交換相互作用は、ハバード模型から t/U の4次の摂動項として導出される¹⁷⁾。

この J - J_4 模型の基底状態は、 $J_4 > 0$ の条件のもとで、2体相互作用 J を強磁性(負)から反強磁性(正)まで変えたパラメータ領域において調べられてきた。まず、2体相互作用が支配的な場合には、強磁性相互作用では完全強磁性状態を持つ強磁性相が、反強磁性相互作用では 120° 構造を有する反強磁性秩序相が存在する。いずれも、4体相互作用が強くなるにつれ、マグノン励起の分散関係が平坦になり秩序が不安定化する。

一方、2体と4体相互作用の競合の強い領域に現れる新しい相の相図は、最近、盛んに研究されてきており、徐々に明らかになりつつある。第6図参照。半古典近似の範囲では、4体スピン相互作用が強い領域ではスカラー型カイラル秩序を持つ4副格子状態が基底状態になる^{18,19)}。また、強磁性2体相互作用と4体相互作用の競合する領域では古典極限の基底状態に非自明な縮退が現れ²⁰⁾、反強磁性2体相互作用と4体相互作用が競合する領域では非共面的(non-coplanar)な6副格子状態が現れる^{21~23)}。しかし、これら競合領域における古典の状態は、いずれもスピン1/2の量子系では、強い量子揺らぎにより消失してしまうよ



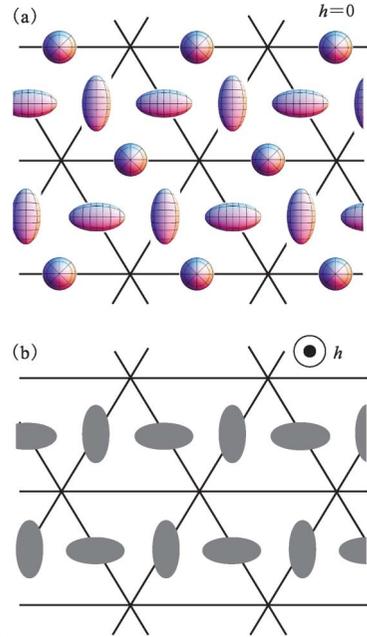
第6図
三角格子上の J - J_4 模型の基底状態相図。
(a) 古典系 ($S=\infty$), (b) 量子系 ($S=1/2$). 相互作用パラメータは, $J_4 > 0$ のもと, J を正から負まで変えている. 各相の特性は本文を参照のこと.

うである^{24,25}). 現在までにわかってきた新たに出現する3種類の量子的な相の振る舞いと大まかな相図を以下で述べる:

(i) スピンネマティック相: 2体相互作用が強磁性的 ($J < 0$) な場合に, 強磁性相に隣接した有限パラメータ領域 ($3.5 < |J|/J_4 < 4.2$) に, 各サイト上のスピンの局所磁化を持たない (つまり $\langle \mathbf{S}_i \rangle = 0$ となっている) 量子的な磁性相が現れることが, 最近の厳密対角化法と群論的解析により示されている²⁷). この状態は波動数零の状態になっており, スピン自由度の結晶化が起きておらず併進対称性が保たれている. しかし, スピンの対称化された2階のテンソル量²⁸)で観測されるようなスピンの部分的な回転対称性の破れが起こり, ボンド上のスピン自由度に第7図(a)のようなスピンの反強四極子秩序

$$\begin{aligned} \langle S_i^x S_{i+e_1}^x \rangle - \frac{1}{3} \langle \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_{i+e_1} \rangle \\ = \langle S_i^y S_{i+e_2}^y \rangle - \frac{1}{3} \langle \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_{i+e_2} \rangle \\ = \langle S_i^z S_{i+e_3}^z \rangle - \frac{1}{3} \langle \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_{i+e_3} \rangle > 0 \quad (3) \end{aligned}$$

が存在する. ここで $\mathbf{e}_1, \mathbf{e}_2, \mathbf{e}_3$ は最近接格子点を結ぶベクトルである. この状態では, 三角格子の3種類のボンド上で定義される四極子モーメントの主軸が互いに直交している. このように, この相はスピン自由度の液体的な特性とスピンの棒状自由度 (四極子モーメント) の秩序が共存してお



第7図
三角格子多体スピン交換模型に現れるスピンネマティック相におけるボンド上のネマティックディレクター (四極子モーメント) 自由度の模式図.
(a) 零磁場下, (b) 磁場下. 磁場下では, 磁場に垂直なスピン自由度の対称性だけを描写しているが, 他に, 各サイト上に, 磁場に誘起された磁気モーメントが存在する. なお, スピン自由度は, ボンド上に局在しているわけではなく, 三角格子上を動き回りながら, このような秩序をボンド上に形成している. これらの状態が併進対称性を破っていないことに注意して欲しい.

り, 液晶におけるネマティック相との類似性から, スピンネマティック相と呼ばれる^{28,29}). この新しい量子相は, 近年盛んに理論的に研究されており, 明らかになってきた特徴を次節 (§3.2) でさらに述べる. また, 第7図のようなスピンネマティック状態の出現は, $d+id$ 波のマグノン束縛対の凝縮により引き起こされることが, §3.4 で述べる一般化した多体スピン交換模型を調べることにより明らかになる.

また, J - J_4 模型では, このスピンネマティック相のパラメータ領域に磁場をかけると磁場中でトライアティック状態と呼ばれるスピンの八極子秩序状態に1次転移することが数値計算により示されている³⁰). このことは, このモデルに四極子相関と八極子相関の強い競合が存在することを意味している.

(ii) スピン無秩序 I 相: 4 体相互作用が強い領域では, 励起エネルギーに J_4 の強さとほぼ同等のスピンギャップが開いた無秩序状態が現れることが, 厳密対角化の計算により示されている^{24,25)}. 半古典近似で見られたスカラー型カイラル状態は量子揺らぎにより消失しているようである. しかし, この量子状態の特性は, よく判っているとは言い難い.

(iii) スピン無秩序 II 相: 4 体相互作用の強い領域に現れるスピン無秩序相 I と反強磁性 2 体相互作用が強い領域に現れる 120° 構造の反強磁性秩序相の間に, スピンギャップは開いているもののスピン無秩序 I 相とは異なるスピン無秩序相の存在が, 厳密対角化の解析から示唆されている²⁶⁾. この相はスピンギャップの中に多数の非磁氣的励起がまつたスピン液体相になっているのではないかと考えられているが, その特性は未だよくわかってはいない. この相は, 有機絶縁体において観測されるスピン液体相³¹⁾との関連からも興味深い.

3.2 スピンネマティック相

ここで, 前節の相図に現れたスピンネマティック相の特徴についてもう少し説明しよう. このスピンネマティック状態と類似した秩序変数を持つ状態として, スピン $S=1$ の三角格子双 1 次-双 2 次模型における反強的四極子状態がある^{32,33)}. この四極子状態の場合には, 各四極子モーメントは各サイト上に局在する $S=1$ のスピン 1 個により作られ, スピン量子化軸を四極子モーメントの主軸にとると, $|\alpha\rangle \equiv |S=1, S^z=0\rangle$ と記述される. また, $S=1$ の反強的四極子状態は, 平均場近似で, 3 種類の副格子毎に異なる四極子をおいた直積状態 $\otimes_{i \in A} |x\rangle_i \otimes_{i \in B} |y\rangle_i \otimes_{i \in C} |z\rangle_i$ として記述される.

しかし, スピン $S=1/2$ の系の場合には, 一つのスピンだけでは四極子構造を作ることができない. そのため, 式(3)のように四極子秩序変数はボンド上で定義される. このようなボンド上の四極子自由度の出現は, マグノン束縛対の形成およびその凝縮により理解できる^{29,34,35)}. マグノン束縛対が安定に存在し, 格子を動き回ることによりボーズ・アインシュタイン凝縮を起こし, 位相の

コヒーレンス $\langle S_i^- S_{i+1}^- \rangle = \sqrt{\rho} \exp(2i\theta)$ を獲得する. ここで, $S_i^- S_{i+1}^-$ は, マグノン対の生成演算子, θ はスピン z 軸周りのスピン回転角度を表わす. このコヒーレンスにより, 四極子秩序

$$\begin{aligned} \text{Re} \langle S_i^- S_{i+1}^- \rangle &= \langle S_i^x S_{i+1}^x - S_i^y S_{i+1}^y \rangle = \sqrt{\rho} \cos 2\theta \\ \text{Im} \langle S_i^- S_{i+1}^- \rangle &= \langle S_i^x S_{i+1}^y + S_i^y S_{i+1}^x \rangle = \sqrt{\rho} \sin 2\theta \end{aligned} \quad (4)$$

が出現する. 式(4)で与えられる秩序変数が, スピンの z 軸周りの 180° 回転で元に戻る構造をしていることから, ベクトルとしてではなく, 反転不変な棒状自由度のように振る舞うことを示している. 三角格子の多体スピン交換模型は, §3.4 で示すように, 2 体の強磁性相互作用と多体相互作用の競合が安定な $d+id$ 波のマグノン束縛対を生み, スピンネマティック相の出現を引き起こしているのである.

最近, このネマティック状態を理論的に記述するものとして, スピン演算子のフェルミオン表示における, スピン三重項対を用いた平均場理論が提唱されている³⁶⁾. この理論では, スピン三重項対のスピン異方軸 (d ベクトル) が四極子モーメントの主軸に対応する. また, $S=1/2$ のスピンネマティック状態が, スピン三重項ボンドの動き回る液体的状態 [いわゆる RVB (resonating valence bond) 状態] になっていることがわかる. このように, $S=1/2$ の系のスピンネマティック状態では, ボンド上に作られる $S=1$ のスピン自由度が遍歴しており, スピン自由度の液体的な状態となっている. $S=1$ のスピン自由度が結晶を形成している $S=1$ の系での反強的四極子状態とは, 質的に異なる.

さらに最近, 正方格子 J_1-J_2 模型におけるネマティック状態に対し, フェルミオン表示の平均場解からスタートした変分モンテカルロ計算³⁷⁾ や $1/N$ 展開法³⁸⁾ による研究が行われ, 平均場近似を越えた理論的取り扱いへと進展している.

3.3 磁化プラトー

フラストレート磁性体が示すもう一つの興味深い現象として, 磁化曲線中のプラトー構造 (いわゆる磁化プラトー) がある. 通常の三角格子上の反強磁性ハイゼンベルグ模型では, 飽和磁化の

1/3の場所に磁化プラトー構造が現れることが知られている^{39,40}。ところが、三角格子上で4体相互作用が強い場合には、磁化曲線中に飽和磁化の半分の場所に広いプラトー構造が現れる^{18,20,24} [第8図(c)参照]。これは、磁場中で、4副格子構造を持つ共線的(collinear)なuuud型秩序状態が安定化することによる²⁰。この4副格子スピン構造の安定化に4体相互作用が本質的な役割を果たしており、磁化 $m/m_s=1/2$ における磁化プラトー出現は4体相互作用固有の現象である。

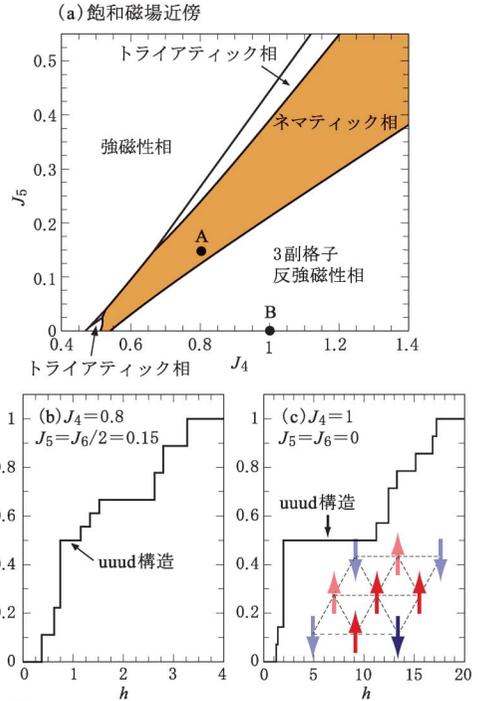
3.4 $J-J_4-J_5-J_6$ 模型：

スピネマティック相と磁化プラトー

上記の $J-J_4$ 模型では、実験から見積もられた相互作用の値の近傍では、スピンギャップの開いた基底状態が実現し、さらに磁場中では磁化プラトーが磁化半分の場所に出現するもののそのプラトーフ幅は非常に広いなど、実験で観測されている振る舞いをあまりよく再現しない。多体スピン交換模型が示す磁性と2次元固体ヘリウム3薄膜の磁性を定量的に比較するには、6体相互作用まで入れた多体交換模型を考える必要がある。

6体相互作用まで含む $J-J_4-J_5-J_6$ 模型を調べると、強磁性相に隣接した広いパラメータ領域に前述のスピネマティック相が安定に出現する²⁷。

このスピネマティック相のパラメータ領域は、固体³He薄膜で見積もられたパラメータ点の近傍まで伸び、広がっている。特に、第8図(a)に示した飽和磁場下のスピン偏極状態におけるマグノン不安定性の解析からわかるように、5体および6体相互作用が入ることにより、 $J-J_4$ 模型に存在した四極子相関と八極子相関の競合が消え、四極子秩序を引き起こす $d+id$ 波のマグノン束縛対が安定化する。その結果、零磁場下から飽和磁場直下まで、スピネマティック状態が出現することが最近の数値計算により示された²⁷。磁場中のスピネマティック状態は、 $d+id$ 波と $d-id$ 波の2種類のマグノン対が同じ密度で凝縮しており、その結果、第7図(b)に示すような空間の C_3 回転対称性が破れた状態になっている。この状態は、磁場を零まで変化させると第7図(a)の零磁場下のスピネマティック状態に連続的に変化する。



第8図

(a) 三角格子多体スピン交換模型における、飽和磁場近傍における磁気相図。各磁性状態は、飽和磁場におけるマグノン不安定性により引き起こされる。相互作用パラメータは、 $J=-2, 2J_5=J_6$ の空間に制限している。

(b) [(c)]図(a)中の点A[点B]における磁化曲線。

4体スピン相互作用が強い場合に出現する1/2磁化プラトー構造は、このスピネマティック相が出現するパラメータ領域近傍まで残存する。磁化 $m/m_s=1/2$ のスピン空間で見ると、ちょうどヘリウム3の相互作用のあたりが、uuud構造を持つ共線的(collinear)なスピン密度波相が終わる境界になっており、そのため1/2磁化プラトーフ幅が非常に小さくなる。[第8図(b)参照]。この特徴は、第4図に示した固体³He薄膜の磁化曲線の振る舞い¹³)を良く再現する。

§4 その他の低次元格子上の多体交換模型が示す磁性

最後に、三角格子以外の低次元格子上に4体スピン交換相互作用が存在する場合の磁性のいくつかを解説しながら、4体スピン交換相互作用が引

き起こす新奇な量子状態の可能性を紹介したい。

4.1 正方格子 J - J_4 模型

2次元正方格子上の J - J_4 模型では、通常の強磁性相およびネール型反強磁性相以外に、4つの新たな相が出現することが、最近の理論研究により明らかになった(第9図参照)。

(i) スピンネマティック相³⁴⁾: 強磁性2体相互作用に4体相互作用が競合する形で導入されると、強磁性秩序が消え、ボンド上の四極子秩序を有するスピンネマティック状態相が出現する。この相の出現機構は、上記の三角格子の場合同様にマグノン対の束縛状態形成により説明される。

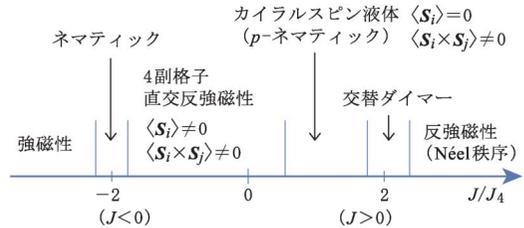
(ii) 4副格子直交反強磁性相: 4体スピン相互作用が強い時には、4副格子構造を持ちスピンの90°ずつ回転した共面的(coplanar)な磁気秩序が安定化する。この状態には、局所的なスピン秩序の他に、ボンド上のベクトル・スピンカイラリティー自由度($\mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_j$)の秩序が共存している。

(iii) カイラルスピン液体相(p -ネマティック相)⁴¹⁾: 4体スピン相互作用に2体の反強磁性相互作用が導入されると、直交反強磁性状態に存在した局所スピン秩序だけが無秩序化し、ベクトル・スピンカイラル秩序は生き残った量子的な状態相が出現する。

(iv) 交替ダイマー相⁴¹⁾: さらに2体反強磁性相互作用が強い時、カイラルスピン液体相とネール型反強磁性相の間に、スピン自由度がダイマー化することにより並進対称性が破れ、スピギャップの開いた状態相が存在する。

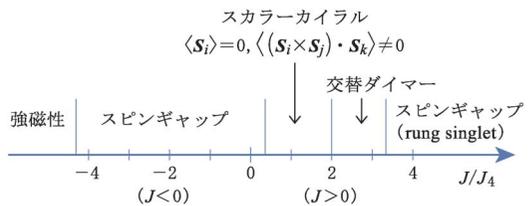
4.2 梯子格子 J - J_4 模型

梯子格子上の反強磁性ハイゼンベルグ模型ではスピギャップの開いた状態が基底状態となることが知られている⁴²⁾。この模型に4体スピン相互作用を加えていくと、一旦スピギャップが閉じ量子相転移を起こし、スピギャップの開いた複数の異なる量子相へと移り変わる(第10図参照)^{43,44)}。最初に、並進対称性の破れたダイマー状態相へと2次転移する。次に、スカラー型カイラル秩序 $\langle \mathbf{S}_i \cdot (\mathbf{S}_j \times \mathbf{S}_k) \rangle > 0$ が存在する状態相へと1次転移する。この状態では、時間(T)とパリティ



第9図

正方格子 J - J_4 模型の基底状態相図。 $J_4 > 0$ のもと、 J を正から負まで変えている。



第10図

梯子格子 J - J_4 模型の基底状態相図。 $J_4 > 0$ のもと、 J を正から負まで変えている。

ー(P)の反転対称性が破れている。さらに4体相互作用を強めると、対称性の破れを伴わないスピギャップ相へ2次転移する。この模型の相図には、スピン自由度とカイラリティー自由度間の厳密な相対性が存在することが見つかっており^{43,45)}、統計物理の観点からも興味深い系になっている。

§5 まとめ

本解説で、多体スピン交換相互作用が引き起こす磁性について、最近の進展を含めて説明してきた。低次元系における最近の研究により、多体交換相互作用がスピンネマティック状態やスカラーカイラル状態、カイラルスピン液体状態等の量子的な新奇なスピン状態を作り出す可能性を持つことが、明らかになってきている。

固体ヘリウム3薄膜には、強い多体スピン交換相互作用が存在することが実験・理論の両面から検証されてきた。特に、近年の1/2磁化プラトールの観測は、4体相互作用の存在を裏づけた。このような固体ヘリウム3薄膜において、多体スピン交換相互作用の競合により、スピンネマティック状態が実現している可能性が理論的に提案されて

いる。しかし、スピネマティック状態が実現しているときに、比熱や帯磁率がどう温度依存性を示すのか、また実験結果を説明できるかなど、未解決の問題が多く残されており、今後の実験・理論両面からの解明が待たれる。実験でどのようにスピネマティック状態を検証したらよいかは、今後の課題である。

また、有機絶縁体の様な相関の弱いモット絶縁体における、反強磁性ハイゼンベルク模型と4体スピン交換相互作用の競合による量子スピン液体出現の可能性も未解明の大きな問題として残っている。相関の弱いモット絶縁体において、4体スピン交換相互作用がどのような量子磁性状態を作り出すのか解明が待たれる。

謝辞

本稿で紹介した研究は、仁木浩二，坂本晴美，引原俊哉，中村正明，Nic Shannon, Philippe Sindzingre, 安田千寿，鈴木正，内平雄真，木内大輔，三浦武秀の各氏との共同研究によるものです。ここに深く感謝いたします。また、最後になりましたが、筆者らをこの分野に導き、常に有益な議論により筆者らを啓発された福山寛氏に心より感謝いたします。

〔参考文献〕

- 1) W. P. Halperin, C. N. Archie, F. B. Rasmussen, R. A. Buhrman, and R. C. Richardson: *Phys. Rev. Lett.* **32** (1974) 927.
- 2) D. D. Osheroff, M. C. Cross, and D. S. Fisher: *Phys. Rev. Lett.* **44** (1980) 792.
- 3) D. M. Ceperley and G. Jacucci: *Phys. Rev. Lett.* **58** (1987) 1648.
- 4) H. Fukuyama, K. Yawata, T. Momoi, H. Ikegami, and H. Ishimoto: e-print, arXiv: cond-mat/0505177.
- 5) D. J. Thouless: *Proc. Phys. Soc. London.* **86** (1965) 893.
- 6) M. Roger, J. H. Hetherington, and J. M. Delrieu: *Rev. Mod. Phys.* **55** (1983) 1.
- 7) S. Suzuki, T. Miura, and K. Kubo: *J. Low Temp. Phys.* **166** (2012) 59.
- 8) D. S. Greywall: *Phys. Rev. B* **41** (1990) 1842.
- 9) K. Ishida, M. Morishita, K. Yawata, and H. Fukuyama: *Phys. Rev. Lett.* **79** (1997) 3451.
- 10) R. Masutomi, Y. Karaki, and H. Ishimoto: *Phys. Rev. Lett.* **92** (2004) 025301; 枅富龍一，柄木良友，石本英彦: *固体物理* **39** (2004) 379.
- 11) V. Elser: *Phys. Rev. Lett.* **62** (1989) 2405.
- 12) T. Takagi: *J. Phys. Conf. Ser.* **150** (2009) 032102.
- 13) H. Nema, A. Yamaguchi, T. Hayakawa, and H. Ishimoto: *Phys. Rev. Lett.* **102** (2009) 075301.
- 14) B. Bernu, D. Ceperley, and C. Lhuillier: *J. Low Temp. Phys.* **89** (1992) 589.
- 15) M. Roger: *Phys. Rev. Lett.* **64** (1990) 297.
- 16) E. Collin, S. Triqueneaux, R. Harakaly, M. Roger, C. Bauerle, Yu. M. Bonkov, and H. Godfrin: *Phys. Rev. Lett.* **86** (2001) 2447.
- 17) M. Takahashi: *J. Phys. C* **10** (1977) 1289.
- 18) K. Kubo and T. Momoi: *Z. Phys. B* **103** (1997) 485.
- 19) T. Momoi, K. Kubo, and K. Niki: *Phys. Rev. Lett.* **79** (1997) 2081.
- 20) T. Momoi, H. Sakamoto, and K. Kubo: *Phys. Rev. B* **59** (1999) 9491.
- 21) K. Kubo and T. Momoi: *Physica B* **329-333** (2003) 142.
- 22) C. Yasuda, D. Kinouchi, and K. Kubo: *J. Phys. Soc. Jpn.* **75** (2006) 104705.
- 23) C. Yasuda, Y. Uchihira, and K. Kubo: *J. Mag. Mag. Mat.* **310** (2007) 1285.
- 24) G. Misguich, B. Bernu, C. Lhuillier, and C. Waldtmann: *Phys. Rev. Lett.* **81** (1998) 1098.
- 25) G. Misguich, C. Lhuillier, B. Bernu, and C. Waldtmann: *Phys. Rev. B* **60** (1999) 1064.
- 26) W. LiMing, G. Misguich, P. Sindzingre, and C. Lhuillier: *Phys. Rev. B* **62** (2000) 6372.
- 27) T. Momoi, P. Sindzingre, and K. Kubo: *Phys. Rev. Lett.* **108** (2012) 057206.
- 28) A. F. Andreev and I. A. Grishchuk: *Sov. Phys. JETP* **60** (1984) 267.
- 29) 桃井 勉: *日本物理学会誌* **65** (2010) 345.
- 30) T. Momoi, P. Sindzingre, and N. Shannon: *Phys. Rev. Lett.* **97** (2006) 257204.
- 31) Y. Shimizu, K. Miyagawa, K. Kanoda, M. Maesato, and G. Saito: *Phys. Rev. Lett.* **91** (2003) 107001.
- 32) H. Tsunetsugu and M. Arikawa: *J. Phys. Soc. Jpn.* **75** (2006) 083701.
- 33) A. Läuchli, F. Mila, and K. Penc: *Phys. Rev. Lett.* **97** (2006) 087205.
- 34) N. Shannon, T. Momoi, and P. Sindzingre: *Phys. Rev. Lett.* **96** (2006) 027213.
- 35) M. E. Zhitomirsky and H. Tsunetsugu: *Europhys. Lett.* **92** (2010) 37001.
- 36) R. Shindou and T. Momoi: *Phys. Rev. B* **80** (2009) 064410.
- 37) R. Shindou, S. Yunoki, and T. Momoi: *Phys. Rev. B* **84** (2011) 134414.
- 38) R. Shindou, S. Yunoki, and T. Momoi: arXiv: 1109.6464.
- 39) H. Nishimori and S. Miyashita: *J. Phys. Soc. Jpn.* **55** (1986) 4448.
- 40) A. V. Chubukov and D. I. Golosov: *J. Phys.: Condens. Matter* **3** (1991) 69.
- 41) A. Läuchli, J. C. Domenge, C. Lhuillier, P. Sindzingre, and M. Troyer: *Phys. Rev. Lett.* **95** (2005) 137206.
- 42) E. Dagotto and T. M. Rice: *Science* **271** (1996) 618.
- 43) T. Hikihara, T. Momoi, and X. Hu: *Phys. Rev. Lett.* **90** (2003) 087204.
- 44) A. Läuchli, G. Schmid, and M. Troyer: *Phys. Rev. B* **67** (2003) 100409(R).
- 45) T. Momoi, T. Hikihara, M. Nakamura, and X. Hu: *Phys. Rev. B* **67** (2003) 174410.