

論文の内容の要旨

論文題目 Nuclear Magnetism of Sub-monolayer Solid ^3He
 at Ultra Low Temperatures
(超低温における単原子層固体ヘリウム3の核磁性)

氏名 池上弘樹

§ 1 研究背景

原子レベルで平坦な吸着表面をもつグラファイトに物理吸着した固体 ^3He は、理想的な三角格子上のスピン $\frac{1}{2}$ の2次元核磁性を示す。核スピン間には ^3He 原子の直接位置交換に起因する1mK程度の大きさの交換相互作用がはたらく。 ^3He 原子間にはたらくハードコア斥力のため、2体交換だけでなく3体、4体などの多体交換が重要である。偶数体交換は反強磁性的 (AFM) であり、奇数体交換は強磁性的 (FM) である。このAFM相互作用とFM相互作用の競合および三角格子構造により、この系は強くフラストレートする。

これまでに最も多くの研究がなされている吸着第2層目の固体 ^3He では、交換相互作用は低密度領域では約 -0.7 mK でAFM的であり、吸着密度の増加と共に約 2 mK のFM的なものになり、その後小さくなることが明らかになっている。しかし、この交換相互作用のAFMからFMへの移行のメカニズムや、フラストレーションが強いAFM領域での基底状態などまだ解明されていない問題は多い。

本研究では、これらの問題を解明すべく、これまでにあまり研究が行われていない次の2つの系に対して、 $100\text{ }\mu\text{K}$ までNMRの測定を行った。

1. グラファイトに吸着した第1層固体 ^3He
2. HD（水素-重水素分子）を2層コートした上の単原子層固体 ^3He

§ 2 実験方法

グラファイト吸着基板には厚さ76 μm のGrafoilを用いた。Grafoilシートに銀フォイルを裏打ちすることにより100 μK まで冷却するのに十分な熱伝導を取っている。Grafoilはエポキシ製の密封容器の中に入れられている。この密封容器のまわりにNMR用のrf coilが巻かれている。このNMR実験セルを大型の核断熱消磁冷凍機に注意深くセットし100 μK まで冷却して実験を行った。吸着密度はグラファイト吸着基板の表面積（11.4 m^2 ）と導入した ^3He のガス量から決定し、導入ガス量を調節することにより吸着密度を変えることが出来る。NMRの測定は623 kHzで磁場スイープによるcontinuous wave法で行った。磁化はNMRの吸収曲線で囲まれている面積より求めた。

§ 3 グラファイト上の第1層固体 ^3He

第2層目固体 ^3He では、密度の増加とともに交換相互作用がAFMからFMへ移り変わるという事が見出されている。そのメカニズムとして、第2層目の面内の多体交換相互作用の競合や、overlayerである第3層目の液相を介したRKKYの間接交換相互作用が考えられている。しかし3層目液相の存在は実験結果の解釈を複雑にし、完全な理解には至っていない。それに対し、グラファイト上の第1層目固体 ^3He は、固体の密度が40%変化すること、overlayerである2層目液体がないためRKKY的な間接交換相互作用を考えなくてよいことという特徴がある。そのため、面内の多体交換相互作用の密度依存を調べるのに最適な系である。

NMR測定より得られた磁化の温度依存より求めた交換相互作用 (J_x) の密度依存を図1に示す。グラファイト構造に整合な $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 整合相では相互作用が約40 μK の強磁性を示し、さらに密度を大きくしていくと相互作用は-10 μK の反強磁性、80 μK の強磁性と発展することがわかる。高密度極限の計算であるWKB近似計算[1]より求められた相互作用は、絶対値の大きさを除いて7.3 nm^2 以上の領域をよく再現している（図1点線）。これは、高密度では周りのHe原子のハードコア斥力が交換の際の障壁であるため、高密度では3体交換が支配的でFMとなり、密度の減少にしたがい2体交換が急激に大きくなりAFMに移行すると理解される。一方、低密度である $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 整合相ではグラファイトからの周期ポテンシャル（約10 K）が交換の際の障壁となる。周期ポテンシャルの幾何学的な形と交換経路を考えると、2体交換が強く抑えられ、3体交換が支配的になりFMになっていると考えられる（図2）。

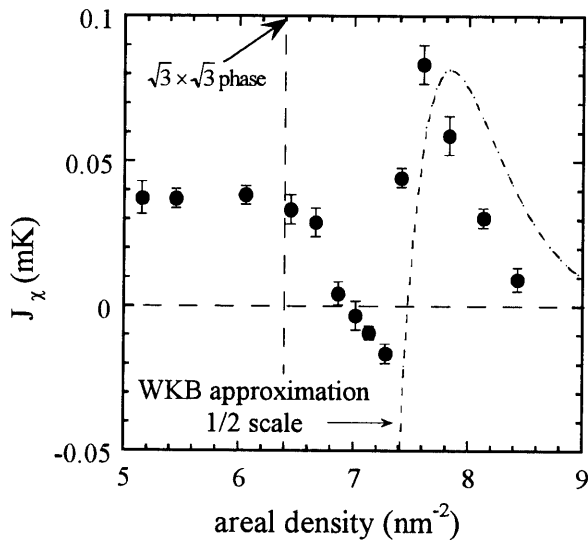


図1 第1層目固体 ^3He の交換相互作用の密度依存。点線：WKB近似計算による交換相互作用

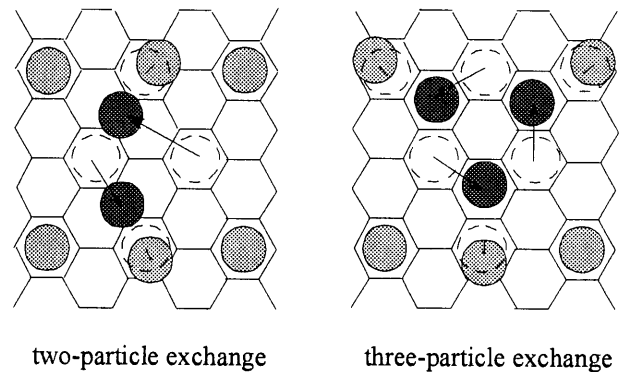


図2 2体交換、3体交換の様子
実線：グラファイトの構造

§ 4 HDを2層コートした上の単原子層固体 ^3He

吸着2層目固体 ^3He の低密度領域では、約 -0.7 mK のAFM的な交換相互作用が働き、FM的な3体交換とAFM的な4体交換が強く競合していると考えられている。最近の厳密対角化法による計算[2]では、競合が強い場合、基底状態は量子的に乱れたspin liquid状態であると予想されており、さらに基底状態の上にspin gapが開いていると考えられている。それに対しHDを2層コートした上では、 ^3He は非常に低密度 (5.2 nm^{-2}) で固体になることが知られている。低密度であるために核スピン間には約 -4 mK と非常に大きな反強磁性相互作用がはたらく。そのため、 $100\text{ }\mu\text{K}$ までの測定により交換相互作用に比べ十分低温まで磁化の測定が可能になり、強くフラストレートしたこの系の基底状態を調べるのに適している。

測定した磁化の温度依存を図4に示す。高温部はCurie-Weiss則によく従う。低温では磁化はゆっくりと増大し、 $100\text{ }\mu\text{K}$ までスピンギャップなどに

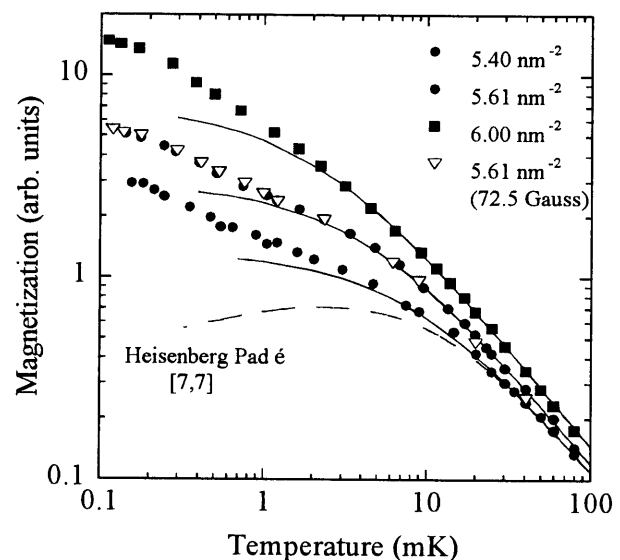


図3 HDを2層コートした上の単原子層固体 ^3He の磁化の温度依存
実線：Curie-Weissフィッティング

よる異常な振る舞いは見られない。高温部分の磁化の温度依存を、多体交換モデルHamiltonianの高温展開式によるフィッティングを行い多体交換相互作用 (J_n) を求めた。フィッティングの際に、 $J_5=0.35J_4$ 、 $J_6=J_4$ と仮定した。求まった多体交換相互作用の密度依存を図4に示す。3体交換と4体交換の大きさが同程度で強く競合しており、それらは密度増加とともに急激に減少する。しかしその割合は密度にあまり依存しない。求まった相互作用は、最近の厳密対角化法により得られている相図上の強磁性と spin liquid 状態の境界近くの spin liquid 状態側に対応する (図5)。しかし、厳密対角化法により予想されているスピングャップは観測されていない。これは、強磁性と spin liquid stateの境界に近づくにつれてギャップが急激に小さくなるためと考えられる。

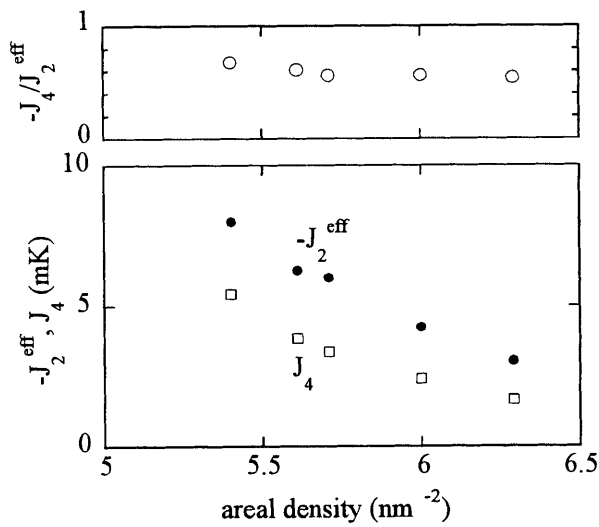


図4 多体交換モデルの高温展開式でのフィッティングにより求められた交換相互作用の密度依存。 ($J_2^{\text{eff}}=J_2-2J_3$)

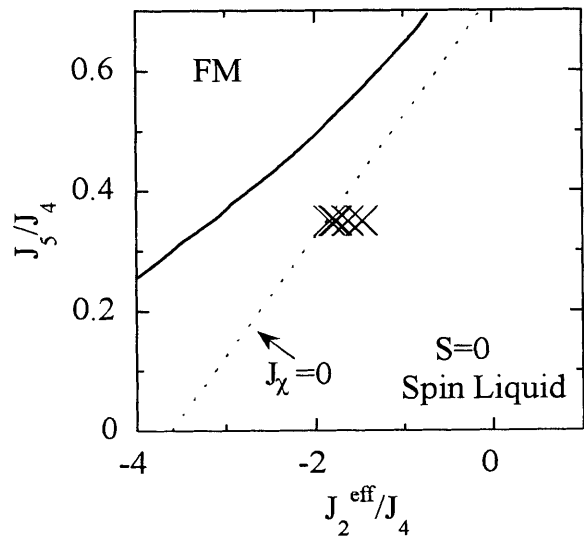


図5 高温展開式でのフィッティングによる交換相互作用 (x) と厳密対角化法での計算による相図の比較

References

- [1] M. Roger, Phys. Rev. B **30**, 6432 (1984).
- [2] G. Misguich, B. Bernu, C. Lhuillier, and C. Waldtmann, Phys. Rev. Lett. **81**, 1098 (1998).