

論文内容の要旨

グラファイト上の 2 層目に形成される 2 次元 3 角格子反強磁性固体 ^3He の磁場中基底状態

根間裕史

研究背景

等方的な相互作用を持つ 2 次元量子スピン系は有限温度では長距離秩序が抑制されるため、興味深い研究対象である。2 次元量子スピン系を実現する物質の一つに、グラファイト表面に吸着した ^3He 薄膜の固体相がある。スピン $1/2$ のフェルミ粒子である ^3He の固体相におけるスピン間相互作用は、 ^3He 原子同士の直接交換相互作用で支配される。交換の際に近距離の He 原子間にはハードコアによる斥力が働くので、2 原子間の交換だけでなく周りの原子を巻き込んだ多原子間の交換（多体交換）が大きな役割をする。交換が偶数原子間で起きた場合、スピン間には反強磁性の交換相互作用が働く。一方、奇数個の原子間の交換では強磁性の交換相互作用が働く。従って、固体 ^3He では強磁性と反強磁性の交換相互作用が競合している。実効的な交換相互作用 (J_χ) を帯磁率の温度依存性から得られるワイス温度 (θ) を用いて $J_\chi = \theta/3$ と定義すると、 $4/7$ 相と呼ばれる 2 層目の固体整合相では $J_\chi = -0.3 \text{ mK}$ であり反強磁性的な相互作用が働く。

$4/7$ 相の基底状態は、多体交換を考慮した 2 次元 3 角格子の少数粒子系の理論モデル（多体交換モデル）で調べられている。1 体から 6 体までの交換相互作用を考えた Misguich らのモデルでは、 n 体交換相互作用の大きさ ($J_n; n = 2 \sim 6$) の比によって基底状態が二種類現れる。ひとつはスピンの向きがすべてそろった強磁性的な状態で、もう一つはスピン液体状態である。帯磁率 (χ) や比熱 (C) 測定の結果から導かれる J_n の比から考えて、 $4/7$ 相の基底状態はスピン液体状態であると考えられる。 C の温度依存性

の測定では、ダブルピークが現れるなどモデルとの共通点が実験でも観測された。

しかし、モデルと一致しない現象も観測された。モデルでは、数 mK 程度と考えられるギャップ (Δ) の大きさ程度の温度で $C \propto \exp(-\Delta/k_B T)$, $\chi \propto \exp(-\Delta/k_B T)$ のような異常が現れる。しかし、実験ではそのような異常は観測されなかった。 C は 100 μ K 程度まで測定がされ、 $T < 0.2$ mK で $C \propto T$ が観測された。一方 χ では、 T の減少とともに緩やかに χ が増加し続ける振る舞いが 10 μ K まで観測された。 C 及び χ の測定結果から、4/7 相の基底状態であるスピン液体のギャップは $\Delta < 10$ μ K または $\Delta = 0$ と考えられる。このように実験と (現在よく用いられているパラメータの) 多体交換モデルで予想される Δ の大きさに相違がある。

4/7 相の振舞いを完全に理解する手がかりを得るために、本研究ではモデルと比較できるような新たな実験事実を探った。着目したのは、テスラオーダー磁場中の実験でこれまでに全く行われていない。しかし、多体交換モデルでは磁化曲線が求められている。計算された磁化曲線には偏極率 (p) が 1/2 のときプラトーになるという特徴がある。1/2 プラトーでは図 1 のような uuud 状態と呼ばれる四副格子の長距離秩序が形成される。実際の磁化曲線はどのようになっているのか、測定を試みた。

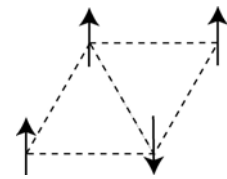


図 1. uuud 状態

実験

試料の磁化 (M) は、当初ファラデー法を用いて測定を試みた。ファラデー法は温度を一定にしたまま 磁化曲線が測定できる利点があるためである。しかし、 ^3He を冷却するための金属箔やグラファイト自身からのバックグラウンドが大きいという難点がある。試料である二次元固体 ^3He の磁化に比べ 2 ケタ以上のバックグラウンドが予測された。そのため、バックグラウンドを ^3He と同じオーダーまで抑えるためダブルグラディエント方式を用いて測定を行った。しかし、それでも十分な精度のデータは得られなかった。

次に、核磁気共鳴 (NMR) を試みた。NMR は、共鳴周波数によって ^3He のみのシグナルを選別することができる。しかし、8 ~ 358 MHz と広い周波数領域にわたって磁化を測定するには不向きである。さらに、大きな振動磁場 (RF) による発熱やグラファイトによる RF シールド効果にも注意せねばならない。これとの妥協策として常温部の伝送線の長さを調節して様々な定在波を励起する CW-NMR 法を試みることにした。CW 法では、試料に小さい RF を加え磁場 (H_0) をゆっくり掃引すると、共鳴による吸収曲線を測定することができる。測定した吸収曲線を横軸である H_0 で積分することで、 M に比例した量が得られる。

4/7 相の測定をする前に、用意した測定系作動を確かめた。そのために常磁性の ^3He 試料 ($\rho_1 = 11.0$ nm $^{-2}$) で磁化の温度依存性を測定し、ブリュアン関数に従うかを調べることにした。測定データがブリュアン関数によく従うことから、低温まで測定が正しくできることを確認できた。

次に 1 層目を ^4He に置換して、4/7 相の試料を作成した。作成の際に 4/7 相の面密度

が Collin や Masutomi らのものと同様になるように ^4He を 13.4 nm^{-2} に ^3He を 5.5 nm^{-2} にした。狙い通りの試料が生成しているのかは、 $H_0 = 0.392 \text{ T}$ で M の温度依存性を測定して確かめた。得られた結果は図 2 の黒丸で、キュリー・ワイス則 $M = C_0 / (T - \theta)$ で C_0 と θ をパラメータとしてフィッティングすると $\theta = -0.9 \pm 0.1 \text{ mK}$ が得られ、Masutomi らや Collin らの実験データとよく一致した。ここで、 $C_0 = CH_0$ であり C はキュリー定数を表す。

結果及び考察

次に、 H_0 を変えて M の温度依存性の測定を行った。NMR で磁化曲線を決定する際に問題になるのは、 M のスケールである。タンク回路の共鳴周波数を変えると、共鳴回路の Q 値が変わるので信号の大きさを単純に比較できない。そこで各磁場での飽和磁化 (M_s) を基準にすることにした。 M_s は M の温度依存性を 100 mK 程度の高温領域で測定して、そのキュリー・ワイス則でフィッティングして得られた C_0 を用いて、式 $M_s = k_B C_0 \mu H_0$ から求まる。ここに、 k_B , μ はそれぞれボルツマン定数、 ^3He 核磁気モーメントである。 M_s から偏極率 $p = M/M_s$ を求めると、温度依存性は図 3 のようになる。(a) は 2.2 T 以下のデータである。

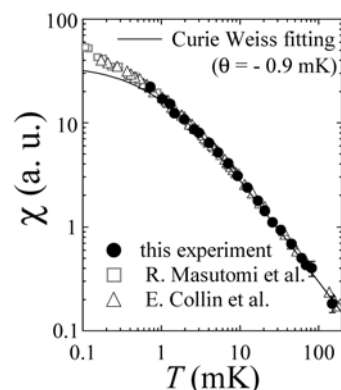


図 2. 作成した試料の帯磁率の温度依存性

る。 2.12 T のデータは、高温では実線のキュリー・ワイス則によく従うが数 mK 以下になると p が $1/2$ で一定になり何らかの相転移が起こっていると考えられる。 2.2 T 以上のデータは (b) に示されている。 10 T に近づくと実線のブリュアン関数のような温度依存性になる。

様々な H_0 で測定した p の温度依存性をもとにすると、図 4 のように一定温度での磁化曲線が得られる。挿入図は低磁場側の拡大である。約 0.5 T 以下で磁化曲線は $p \propto H_0$ である。

データを直線でフィッティングして、低磁場側へ外挿すると、S. Murakawa らによって測定された 0.2 T 以下の実験結果と滑らかに接続することがわかった。この振る舞いはスピギャップが非常に小さいというこれまでの実験事実と矛盾しない。 0.5 T より H_0 が大きくなると、 $p \sim 1/4$ に小さなシヨルダーらしきものも見

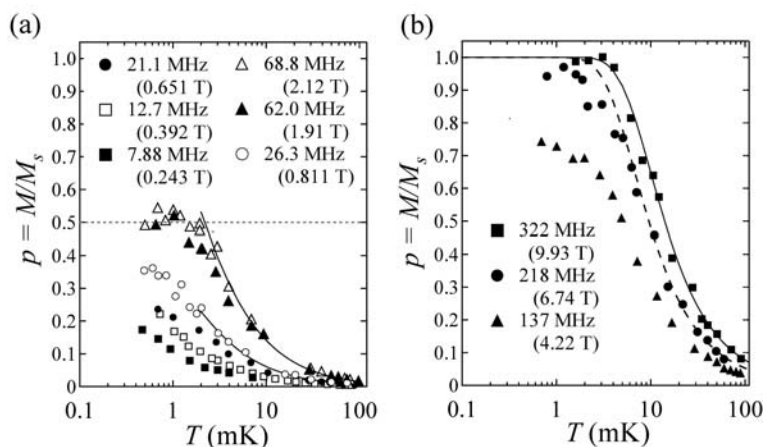


図 3. $4/7$ 相の偏極率の温度依存性 (a) 2.2 T 以下 (b) 2.2 T 以上

える。

$H_0 = 1.2 \text{ T}$ になると、磁化曲線は $p = 1/2$ に達し、プラトーの領域に入る。1/2~プラトーの領域では、多体交換モデルで考えられているような $uuud$ 状態が実現していると考えられる。Momoi らのモデルによると、 $uuud$ 状態への転移は一次転移である。しかし、 p の温度依存性でも磁化曲線でも現在の実験の精度の範囲内で p のジャンプは観測されず、転移は二次であると考えられる。また、転移の前後で NMR シグナルの線幅や共鳴磁場に大きな変化はみられなかった。 $H_0 > 2.2 \text{ T}$ の領域になると、 p は $1/2$ から再び増加する。そして、 $p \sim 2/3$ 前後で磁化曲線の傾きが変わりショルダーのようなものが現れる。このショルダーは小さなプラトーの可能性もある。さらに H_0 が大きくなると、 p の増加は緩やかになり、 $p = 1$ に達する飽和磁場 (H_{sat}) は約 10 T である。

得られた磁化曲線を Misguich 等の多体交換モデル (図 8 の点線) と比較してみると、一致しないことがわかった。不一致の原因の一つとして考えられるのは、モデルで用いられているパラメータが実験で提案されているものと異なっているである。表 1 からわかるように、 J_5/J_4 , J_6/J_4 が実験とモデルで大きく異なる (表 1 で $J_2^{eff} = J_2 - 2J_3$ としている)。

もし Misguich らのモデルで J_6 を、 0.08 からそれより一桁大きい実験の 0.86 にすると H_{sat} が大きくなると予測される。強磁性的な相互作用に寄与する J_5 が少しでも入れれば、実効的な J_4 は小さくなり、 H_{sat} と $1/2$ プラトーの幅は小さくなると予測される。したがって、実験で提案されている程度の J_5 , J_6 をモデルの計算で用いれば、実験結果を再現する磁化曲線を得ることができるかもしれない。

まとめ

本研究ではグラフィイト上の 2 層目の 2 次元 3 角格子反強磁性固体 ^3He (4/7 相) の磁化曲線を飽和磁化に至るまではじめて測定した。0.7 mK の磁化曲線は、0.5 T 以下の領域では過去の実験と同様に磁場に比例することがわかった。1.2 T から 2.2 T の領域では、磁化曲線に $1/2$ プラトーが現れ $uuud$ 状態と呼ばれる多体交換モデルで予測されている長距離秩序が実現していることがわかった。この他、偏極率 $p \sim 1/4$, $2/3$ にはショルダーが見られた。しかし、2.2 T 以上では多体交換モデルの予測とは異なり 10 T 程度の高磁場まで磁化が飽和しないこともわかった。これは、これまで多体交換モデルで用いられてきた 5 体交換と 6 体交換のパラメータが実際の 4/7 相と異なるためかもしれない。

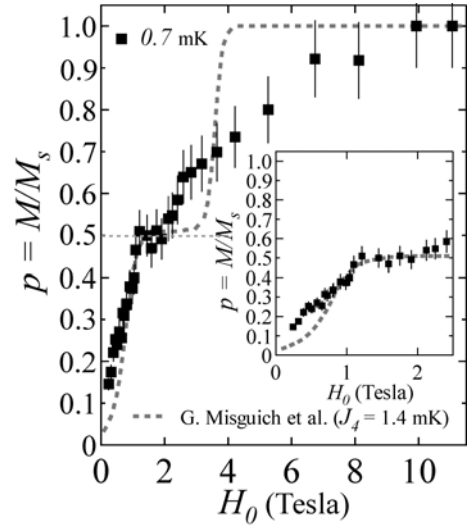


図 4. 4/7 相の磁化曲線

表 1. 実験及び多体交換モデルでの J_i/J_4

| | J_2^{eff}/J_4 | J_5/J_4 | J_6/J_4 |
|-----|-----------------|-------------|-------------|
| 実験 | -2.0 | 0.29 | 0.86 |
| モデル | -2.0 | 0.2 | 0.08 |