

様 式 C - 1 9、F - 1 9、Z - 1 9 (共通)

科学研究費助成事業

研究成果報告書



平成 2 7 年 6 月 8 日現在

機関番号：1 2 1 0 2

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011 ~ 2014

課題番号：2 3 5 4 0 4 0 1

研究課題名 (和文) 2 次元量子固体フラストレート量子スピン系における非磁性置換とバリステック熱伝導

研究課題名 (英文) Non-magnetic Replacement and Ballistic Thermal Conductivity in Frustrated Quantum Spin System of 2-dimensional Quantum Solid

研究代表者

森下 将史 (MORISHITA, Masashi)

筑波大学・数理物質系・助教

研究者番号：9 0 2 5 1 0 3 2

交付決定額 (研究期間全体) : (直接経費) 3,900,000 円

研究成果の概要 (和文) : グラファイト上に吸着ヘリウム薄膜について、主には、ヘリウム 4 (He-4) 薄膜に少量のヘリウム 3 (He-3) を加えて熱容量測定を行い、domain wall 構造をもつ He-4 単原子層薄膜は基本的に固相であるが、domain wall のみが流動性を有することを強く示唆する結果を得た。他に例を見ない特異な現象である上、溶解した He-3 が朝永-Luttinger 液体や質量ゼロの Dirac 粒子として振る舞うことが期待される興味深い系を実現できることを示した。

研究成果の概要 (英文) : The heat capacity of a small amount of He-3 atoms solved in He-4 films adsorbed on graphite surfaces has been measured. The results strongly suggest that helium atoms only exhibit fluidity inside domain walls. This behavior has not been observed in any other system and is very unusual. Furthermore, He-3 atoms in domain walls are expected to behave as Tomonaga-Luttinger liquid or massless Dirac fermions.

研究分野：低温物理学

キーワード：ヘリウム 薄膜 グラファイト 朝永-Luttinger 液体 Dirac 粒子 低次元系

1. 研究開始当初の背景

フラストレートした系の研究が精力的に行われている。このうち、三角格子やカゴメ格子など幾何学的にフラストレートした量子スピン系では、基底状態としてスピン液体状態が期待され、多くの物質で研究が進められているが、合成の難しさや不純物の影響などがネックになっている。グラファイト上に吸着したヘリウム3 (^3He) 固相薄膜は不純物の影響を排除し、2次元性に非常に優れた理想的なフラストレートした2次元量子スピン系を容易に作り出すことができ、スピン液体状態を強く示唆する観測がなされている。特に、スピン素励起による ballistic な熱伝導は、スピン液体状態の実現を強く支持するとともに、スピングャップの有無やスピン相関長についての情報を含む。

2. 研究の目的

本研究では、グラファイト上に吸着したヘリウム薄膜について、以下の点を明らかにすることを目的とする。

- (1) ^3He 固相薄膜は三角格子を基調とするが、カゴメ格子を実現できると興味深い。カゴメ格子を実現することは可能か？ 同じ物質 (^3He) の三角格子とは、磁性などがどのように異なるか？
- (2) ^3He の一部をランダムに ^4He に置換しスピンを希釈したとき、磁性は如何なる変更を受けるか？
- (3) ballistic 熱伝導の測定から、スピングャップの有無とスピン相関長の温度依存性。

3. 研究の方法

グラファイト上 ^3He 薄膜吸着第2原子層 4/7 相において、非磁性の ^4He ドープ量を 1/4 以外に 1/2、3/4 などと変化させて、 ^3He と ^4He が熱励起としてその吸着サイトを交換することに由来する熱容量を観測して、エネルギー

準位に関する情報を得て、 ^4He ドープによりカゴメ格子が実現していることをより確かなものとする。さらに、十分な低温で三角格子 (4/7 相) とカゴメ格子 (^4He ドープ系) での核スピン系の熱容量を測定し、磁性の変化を調査する。また、熱容量と同時に測定される熱伝導からスピン素励起による ballistic 熱伝導のさらなる観測を進め、その温度依存性からスピングャップの有無と、スピン相関長に関する情報を得る。

4. 研究成果

(1) 4/7 相における ^4He 置換

グラファイト上 ^3He 吸着第2層 4/7 相において、 ^3He の 1/4 を非磁性な ^4He 原子に置換することでカゴメ格子を実現できる可能性について、さらなる証拠を得ることを目的として、置換量を 1/4 以外の 1/2 や 3/4 として熱容量測定を行った。これは、数 10 mK の温度領域で現れる熱容量ピークが、 ^3He と ^4He の吸着サイトの交換に由来するものであることを実証するためである。熱容量測定の結果は ^4He 置換量を増すと吸着第2原子層が融解することを強く示唆する結果となり、カゴメ格子実現の確証とはならなかった。他方、この結果は純粋な ^4He 薄膜において、4/7 整合固相が存在しないことを意味し、従来の予測とは反するもので重大な結果である。

(2) 希薄 ^3He - ^4He 薄膜の熱容量 (第2原子層)

^4He 薄膜吸着第2原子層における 4/7 相は、固体でありながら超流動を示す、いわゆる「超固体」の存在が期待されている舞台である。上記の結果は、 ^4He 薄膜においては 4/7 相が存在しないことを示唆しており、4/7 相の存在の有無を確認する意義は大きい。しかしながら、純粋な ^4He 薄膜では観測手段が限られ、

十分な情報を得ることができていなかった。そこで、ごく少量の ^3He を溶解させた ^4He 薄膜の熱容量を、 ^4He の吸着量（面密度）を増大させながら測定した。 ^4He はその状態に関わらずフォノンに由来する小さな熱容量しか持たないが、 ^3He は流体であればフェルミ流体として振る舞い大きな熱容量を示すのに対し、固化、即ち局在すれば無視できる程度の熱容量しか示さないため、母相である ^4He の状態について情報が得られる。熱容量の測定結果を等温曲線として図1に示す。

約 18 nm^{-2} の面密度が $4/7$ 相の面密度に相当し、熱容量がこの面密度で急激に減少していることは、一見、 $4/7$ 相への固化を示唆しているように見える。しかし、熱容量は完全には消失せず、 ^3He が局在していないこと、即ち、 ^4He 薄膜が固化していないことを示している。この面密度での熱容量の急激な減少は、 ^3He 濃厚相と ^4He 濃厚相に相分離した薄膜のうち、 ^3He 濃厚相のみが固化したとすると説

明される。

相分離を起こさないよう、 ^3He の混入量を $1/10$ 以下に減じての熱容量測定では、面密度に依って熱容量は変化せず、この仮説が確認されるとともに、 ^4He 薄膜（ ^4He 濃厚相）は $4/7$ 相には固化しないことが示された。

図1の 22 nm^{-2} 近傍における急激な増大は3原子層目の生成により、全ての ^3He 原子が3原子層目に移動したことに依るものである。この面密度まで熱容量が変化しないことは、少なくとも第3原子層が生成するまで、第2原子層は固化しないことを意味し、従来の知見とは大きく異なる。

(3) 希薄 ^3He - ^4He 薄膜の熱容量（第1原子層）

^4He 吸着第1原子層についても情報は不足している。(2)と同様の測定を吸着第1原子層について行った。結果を等温曲線として図2に示す。

6.4 nm^{-2} 近傍での急激な熱容量の減少は $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 相と呼ばれる、グラファイト基盤の吸着ポテンシャルの凹凸に整合な固相への固化し、

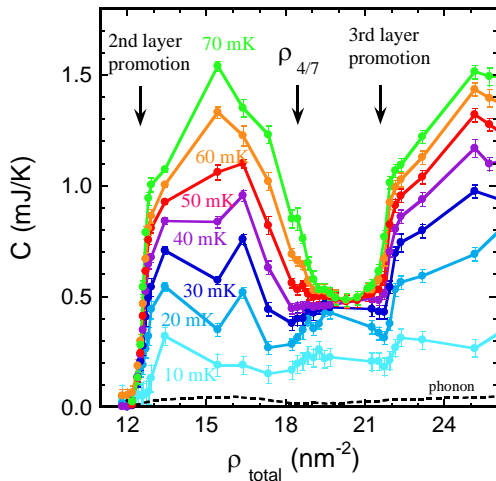


図1: 0.2 nm^{-2} に相当する ^3He を溶解させた ^4He 薄膜の熱容量の等温曲線。 12 nm^{-2} 及び 22 nm^{-2} 近傍における急激な増大は、吸着第2原子層目及び3原子層目の生成による。

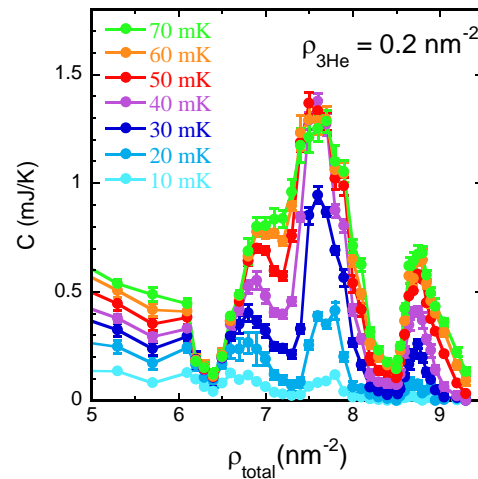


図2: 0.2 nm^{-2} に相当する ^3He を溶解させた単原子層 ^4He 薄膜の熱容量の等温曲線。

^3He が局在しているとして理解できる。しかし、さらに面密度を増大させると再び熱容量が増大し、 ^3He が局在してはいないことを示唆している。従来、この面密度領域で ^4He 薄膜は固相であると考えられており、 ^3He の非局在は予測に反する結果である。また、図3に例を示すように、より高面密度の領域では熱容量が温度の自乗に比例するなど、 ^3He は2次元フェルミ流体としては異常な振る舞いを示す。これは、 ^4He 薄膜が一様に融解して ^3He が自由に運動しているわけではないことを示している。

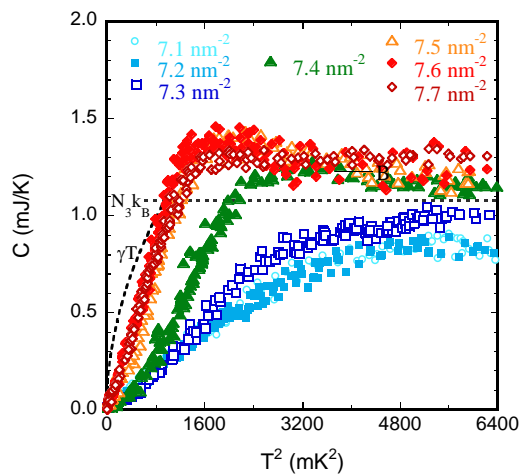


図3: 0.2 nm^{-2} に相当する ^3He を溶解させた単原子層 ^4He 薄膜の熱容量の例。横軸は温度の自乗。

この面密度領域では、 $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 相の吸着サイトに関する domain wall (DW) 構造が、安定な吸着構造のひとつと考えられている。観測事実を説明するひとつの可能性は、DW の内部でのみ、ヘリウム原子が流動性を示すことである。DW 構造には、DW が平行に配列した striped DW 構造と、蜂の巣状に配列した honeycomb DW 構造が存在する。DW が流動性を有する場合、 ^3He 原子は零点エネルギーを小さくするために DW 内に集ることが期待される。striped DW 構

造では ^3He は1次元フェルミ流体、或いは朝永-ラuttinger 液体として振る舞うこととなり、熱容量は低温で温度に比例し、高温極限で $N_3 k_B / 2$ (N_3 は ^3He 原子の個数、 k_B はボルツマン定数) に漸近することが期待される。一方、honeycomb DW 構造では、 ^3He の運動の自由度はグラフェン中の電子と良く似ており、 ^3He が Dirac 粒子として振る舞う可能性が期待できる。このとき、線形分散を反映して熱容量は温度の自乗に比例することとなり、観測された異常を説明できる。高温極限では、 $N_3 k_B$ に漸近することが期待される。熱容量は、以上の期待どおりの振る舞いを示し、DW 中でのみヘリウム原子が流動性を示すことを強く示唆する結果である。

Dirac 粒子として振る舞っていると、 ^3He 原子は全て同じ速さで動き回っていることになるが、その速さを熱容量から見積もることができる。この値は、 ^3He の混入量が少ない方が大きくなっている。これは、フェルミ面が Dirac コーンの先端により近づく効果と理解できる。また、薄膜の面密度が 7.3 nm^{-2} でこの値は極大となり、 8.4 nm^{-2} 近傍で最大となる。 7.3 nm^{-2} 、 8.4 nm^{-2} という面密度は honeycomb DW 構造の 7×7 、 4×4 の周期性に対応し、蜂の巣格子の乱れが少ないほど速さが大きくなるとの期待に一致する。また、測定に用いているグラファイト基盤が 10 nm 程度の大きさの結晶の集まりであるため、周期構造の小さい方が蜂の巣構造を良く定義でき、より速さが大きくなっていると考えることができる。以上の結果も、DW のみが流動性を有しているとの仮説を支持する。

DW のみの流動性は他に例を見ない特異な現象である。また、溶解した ^3He が朝永-Luttinger 液体や質量ゼロの Dirac 粒子として振る舞うことが期待できる興味深い系が実現できることが示された。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計1件)

- Masashi Morishita, “Heat Capacity of Dilute ^3He - ^4He Films on Graphite” *J. Low Temp. Phys.* **171**, 664-669 (2013) (査読有り).

[学会発表] (計12件)

森下将史, 「グラファイト上ヘリウム薄膜における Dirac 粒子系」, 日本物理学会第 70 回年次大会 (早稲田大学, 東京都新宿区, 2015 年 3 月 23 日).

M. Morishita: “Fluidity of Domain Walls in Dilute ^3He - ^4He Mixture Films”, 27th International Conference on Low Temperature Physics (LT27) (Buenos Aires, Argentina, August 7, 2014).

森下将史, 「グラファイト上ヘリウム薄膜における Dirac 粒子系」, 物性研短期研究会「スーパーマターが拓く新量子現象」(東京大学物性研究所, 千葉県柏市, 2014 年 4 月 18 日).

森下将史, 「グラファイト上ヘリウム 4 薄膜 domain wall の流動性」, 日本物理学会第 69 回年次大会 (東海大学, 神奈川県平塚市, 2014 年 3 月 30 日).

M. Morishita: “Reentrant Solidification of First Layer of ^4He Film on Graphite”, International Symposium on Quantum Fluids and Solids (QFS2013) (Matsue, Japan, August 5, 2013).

森下将史, 「グラファイト上ヘリウム 4 薄膜吸着第 1 原子層の状態」, 日本物理学会 2013 年秋季大会 (徳島大学, 徳島県徳島市, 2013 年 9 月 28 日).

森下将史, 「グラファイト上ヘリウム 4 薄膜吸着第 2 原子層の状態」, 日本物理学会 2012 年秋季大会 (横浜国立大学, 神奈川県横浜市, 2012 年 9 月 20 日).

M. Morishita: “Heat Capacity of Very Dilute ^3He - ^4He Films on Graphite”, International Symposium on Quantum Fluids and Solids (QFS2012) (Lancaster, United Kingdom, August 20, 2012).

森下将史, “Does the 4/7 phase exist in ^4He Film Adsorbed on Graphite?”, 物性研短期研究会「量子凝縮系における defects と topology」(東京大学物性研究所, 千葉県柏市, 2012 年 1 月 5 日)

森下将史, 「2 次元量子固体ヘリウム 3 におけるフラストレートした量子スピン系」, 物理学セミナー (筑波大学, 茨城県つくば市, 2011 年 9 月 14 日).

森下将史, 「グラファイト上吸着 ^3He - ^4He 薄膜の固化」, 日本物理学会 2011 年秋季大会 (富山大学, 富山県富山市, 2011 年 9 月 23 日).

M. Morishita: “Solidification of Second Atomic Layer of ^4He Film Adsorbed on Graphite”, 26th International Conference on Low Temperature Physics (LT26) (Beijing, China, August 15, 2011).

6. 研究組織

(1) 研究代表者

森下 將史(MORISHITA, Masashi)

筑波大学・数理物質系・助教

研究者番号 9 0 2 5 1 0 3 2

(2) 研究分担者

高木 丈夫 (TAKAGI, Takeo)

福井大学・工学研究科・教授

研究者番号 0 0 2 6 6 7 2 3