

令和元年6月6日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2015～2018

課題番号：15H03684

研究課題名(和文) 2次元中性フェルミ粒子系の磁性と超流動

研究課題名(英文) Magnetism and Superfluidity in Charge-Neutral Fermi Particles in Two Dimensions

研究代表者

福山 寛 (FUKUYAMA, Hiroshi)

東京大学・大学院理学系研究科(理学部)・教授

研究者番号：00181298

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 10,600,000円

研究成果の概要(和文)：グラファイト表面に物理吸着した単原子層ヘリウム3 (^3He ：核スピン $1/2$)の比熱を超低温まで測定し、以下の新しい知見を得た。(1)量子固体と量子液体の中間に量子液晶が存在し、その正体は量子ヘキサティック相である可能性が高い。そして、従来から知られていたギャップレス量子スピン液体(QSL)状態出現の要因はこの量子液晶性にある。(2)グラファイト表面を水素の2分子層でコートした系で新たな ^3He 整合相を発見し、比熱や帯磁率が特異な温度依存性をもつ新奇なQSL状態を見出した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

多数のヘリウム3原子を固体表面ごく近傍の2次元空間に閉じ込めて超低温に冷却すると、これまで知られていないさまざまな集団的な振る舞いを見せる。本研究では、絶対零度でも一定の流動性と結晶性を併せ持つ「量子液晶」という物質相が存在すること、それが他のさまざまな物質系で議論されている「量子スピン液体」という新しい磁性状態の要因である可能性を示した。また、固体表面の周期的な吸着ポテンシャルの中で、ヘリウム3原子が規則的に並ぶ相が見つかり、そこではまた全く異なる量子スピン液体状態が実現していることも見出した。これらの新奇磁性は量子計算機の新しい基礎原理にもつながる。

研究成果の概要(英文)：By measuring specific heat of helium 3 (^3He : nuclear spin $1/2$) monolayers physisorbed on graphite surfaces down to millikelvin temperatures, we obtained the following new results: (1) There exists quantum liquid crystal in between quantum solid and quantum liquid. The possible structure of the quantum liquid crystal state in ^3He monolayers is quantum hexatic phase. The quantum liquid crystallinity would result in the emergence of the known gapless quantum spin liquid (QSL) state in this system. (2) A new ^3He commensurate phase was discovered in ^3He monolayer on graphite preplated with a bilayer of HD, where a new class of QSL state with curious fractional powers of temperature dependences of specific heat and magnetic susceptibility is realized.

研究分野：低温物理学

キーワード：量子スピン液体 量子液晶 2次元フェルミ系 異方的超流動

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19（共通）

1. 研究開始当初の背景

原子スケールで平坦なグラファイト表面に中性原子のヘリウム3 (^3He : 核スピン 1/2) を数原子層物理吸着させた系は、非常にクリーンでほぼ完全な 2 次元のフェルミ粒子系のモデル物質である。その粒子間相互作用は、近距離で強い斥力、長距離で弱い引力のレナード-ジョーンズ型である。この系の特色は、制御パラメータである吸着面密度 (ρ) を変えることで、乱れを新たに導入することなく、粒子相関を精密かつ広範囲に制御できる点である。中でも運動エネルギー、粒子間斥力エネルギー、1 層目が作る周期ポテンシャルの三つのエネルギースケールが拮抗する吸着第 2 層目は量子系として大変興味深く、モット転移近傍の強相関電子系の振る舞いとも強い類似性がある。

2 層目 ^3He の量子物性は、これまでのところ研究代表者のグループを含む、英ロンドン大、東大物性研、仏ネール研、米ベル研のグループの研究によって、密度を増加するにつれ以下の現象が現れることが分かっている：

- ① 局在点が近づくとフェルミ液体相の準粒子有効質量が 7~13 倍増強し、あたかもモット転移のような振る舞いを見せる（文献①）。
- ② その結果生ずる低密度局在相の核磁性は、スピン励起にギャップをもたないギャップレス量子スピン液体 (QSL) と見なせる（文献②③）。
- ③ さらに高密度にすると三角格子固体相が現れ、その核磁性は強磁性となる（文献③④）。

しかし、低密度局在相の構造、ギャップレス QSL 状態やその磁気素励起の正体、フェルミ液体相は低温で超流動転移 (BCS 転移) するか否か、など重要な物理が未解明のまま残されている。さらに、ボソン系の 2 層目 ^4He に対する経路積分モンテカルロ (PIMC) 計算 (文献⑤) では、実験で明瞭に見つかっている低密度整合相の存在が再現できないなど状況は混沌としている。

こうした状況は、3 次元バルク ^3He における固相の反強磁性秩序やスピン三重項超流動が詳細に理解されていることと対照的である。同じくクリーンな系であるはずの吸着 2 次元系の量子物性の解明が遅れている一因として、従来広く用いられてきたグラフォイル吸着基板 (比表面積 $20 \text{ m}^2/\text{g}$) の単結晶子サイズが 10-20 nm と小さく、全吸着サイトの 10% 近くが結晶粒界近くの不均一サイトであるという実験的な事情がある。基板の不完全性は、サイズ効果で磁性の本質を変わったり、超流動転移を阻害している可能性がある。

2. 研究の目的

グラファイト表面に吸着した 2 層目単原子層 ^3He の低密度局在相で見出されたギャップレス量子スピン液体状態とその磁気素励起の正体を、基板の結晶粒界付近に偏在する不均一吸着サイトの影響を除去したできるだけクリーンな状態で探る。そのため、従来のものより単結晶子サイズが大きい ZYX 基板を超低温下の比熱や NMR 測定に用いる。得られた結果を強相関電子系物質の知見とも比較しつつ、2 次元中性フェルミ粒子系としての一般性と特異性を明らかにする。本研究では、クーパー対の空間対称性が異なる超流動相間の転移という初めての物理現象が観測される期待もある。

3. 研究の方法

従来のグラフォイル基板より単結晶子サイズが 10 倍程度大きい ZYX 基板を用いた試料セルを製作し、グラファイト表面に吸着した 2 層目 ^3He の比熱と NMR 測定を 0.1 mK の超低温度まで行う。試料面密度を広範囲に変えて、フェルミ液体相から低密度局在相そして高密度固体相までを網羅する。ギャップレス QSL 相の低温極限の比熱の温度依存性を精密に決めるには、交換相互作用 (J) のできるだけ大きな系が必要である。そのため、グラファイト表面を重水素化水素 (HD) 2 分子層でコートした上に単原子層 ^3He を吸着した系 ($^3\text{He}/\text{HD}/\text{HD}/\text{gr}$) について測定を行う。ZYX 基板は単結晶子サイズは大きい比表面積はグラフォイルの 1/10 しかないため、比熱試料容器はできるだけアデンダへの寄与が小さい素材で製作する。また、2 次元超流動探索のためには、低温プリアンプを開発して S/N 向上を図る。

4. 研究成果

(1) ZYX 基板を使った吸着第 2 層目の ^4He および ^3He の比熱を、 $100 \text{ mK} \leq T \leq 1.9 \text{ K}$ の温度域で細かな面密度ステップで網羅的に測定し、その量子相図を完成させた。そこで、低密度域の量子液体相と高密度域の量子固体相の中間の一定の密度範囲 (7~9%) で特異相 (C2 相) が存在することを確認した。ここは従来、1 層目 He に対して $4/7$ の密度比をもつ $4/7$ 整合相と考えられてきた。ところが、本研究で、融解に伴う比熱異常の温度依存性がコスタリッツ-サウレス (KT) 型であることが確定し、整合相で期待される一次や二次の相転移とは明らかに異なる。グラフォイル基板の実験データとの比較から、サイズ効果もほとんど見られないこともそれを支持する。我々は、この特異相が、空間対称性が部分的に

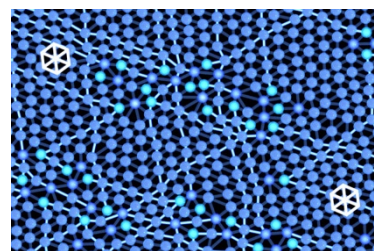


図 1. 量子ヘキサティック相

破れた原子分子系で初めての「量子液晶」との考えに至り、これを提案した (発表論文⑦)。具

体的には、絶対零度でも転位対が強い量子ゆらぎのために解離して自由転位が存在し、その一方で、自由回位は存在せずすべて回位対を組んだ「量子ヘキサティック相」の可能性が高いと考えている。そこでは、ボンド配向性の準長距離秩序のみが存在するはずである(図1)。C2相は、研究代表者が1997年に見出したギャップレス QSL 状態の舞台であるが(文献2)、本研究はその構造が三角格子の「固相」ではないことを強く示唆している。

(2) $^3\text{He}/\text{HD}/\text{HD}/\text{gr}$ 系の核磁気比熱を測定した結果、量子液晶仮説の有力な証拠が得られた。この系の特色は、2層目 ^3He 系に比べて、下地層からの周期的吸着ポテンシャルの振幅が3倍大きく、周期も13%長いことである。そのため下地層にロックした真の整合相が安定化しやすいと期待される。この系の磁気比熱を $0.15 \leq T \leq 90$ mK の超低温域で測定し、2層系 ^3He の量子液晶相(C2相)と極めて類似したギャップレス QSL の性質を示す特異相(C2-like相)が、やはり量子液体相と強磁性的量子固相の中間密度域に存在することを確認した。すなわち、非常にブロードな比熱(C)ピークをもち、 $T \rightarrow 0$ の極限で $C \propto T$ として $\chi \rightarrow \text{const.}$ と振る舞う(χ は帯磁率)。しかも、C2-like相の場合は20%という広大な密度範囲で存在し、その間、 J の大きさのみで磁性がスケールする、すなわち非常に圧縮性に富む単一相であることが判明した(C2-like相の密度範囲で $|J|$ は11倍変化する:図2下)。C2相とC2-like相は同一の量子相であり、新奇な量子液晶相である可能性が極めて高い。今後、このタイプのギャップレス QSL 状態出現の重要な要素として、大きな密度ゆらぎが注目される。これまでも、C2-like相の存在や、C2相の磁性との類似性は認識されていたが、C2相が4/7整合相であると信じられてきたために、その磁性について適切な解釈がなされてこなかった。

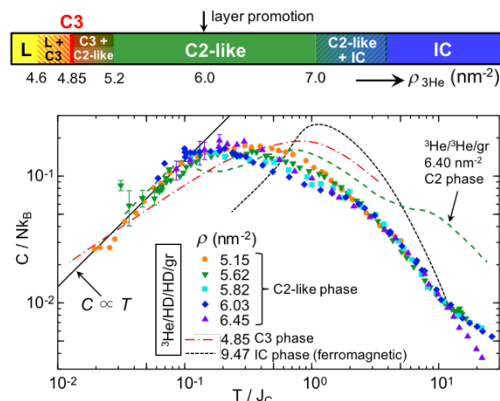


図2. (上) 単原子層 ^3He ($^3\text{He}/\text{HD}/\text{HD}/\text{gr}$ 系) の $T = 0$ での状態相図。(下) C2-like相の磁気比熱。温度軸は $|J|$ で規格化してある。

(3) 上述した $^3\text{He}/\text{HD}/\text{HD}/\text{gr}$ 系の比熱測定の中で、フェルミ液体相とC2-like相の間のごく狭い密度範囲(2%以内)に、比熱の温度依存性が両相と全く異なる新たな特異相を発見した。これは、これまで知られていなかった新たな整合相(C3相)と考えられ、非常に低密度($= 4.74 \text{ nm}^{-2}$)で局在できるのは、下地HD層の作る周期ポテンシャルの振幅が大きいためであろう。下地層との密度比は4/7よりはるかに1/2に近く、1/2整合相の可能性がある。従来は、モット転移の結果ここで4/7整合相が安定化するという主張と(文献①)、そのQSL相が圧縮されながら20%もの広い密度範囲で安定化し続ける(文献⑥)という実験事実の間で深刻な解釈の矛盾があった。実際には、液相 \rightarrow 1/2整合相(C3相) \rightarrow 量子液晶相(C2-like相) \rightarrow 固相という状態変化が起こっており、本研究でその矛盾は解決された(図2上)。なお、液相 \rightarrow C3転移以外は一次相転移であることも判明した。

(4) $^3\text{He}/\text{HD}/\text{HD}/\text{gr}$ 系で見つかった新たな整合相(C3相)の磁性は、量子液晶相(C2相やC2-like相)とは明確に異なる新しいギャップレス QSL である。低温極限で比熱と帯磁率は $C \propto T^{2/3}$ として $\chi \propto T^{-1/3}$ という特異な分数べき乗に従う(図3)。ここで、 χ データは文献⑥⑦のデータを我々が再解析したものである。比熱と帯磁率の特異な温度依存性は、 $\varepsilon \propto k^3$ の分散関係をもつフェルミ粒子の磁気素励起を仮定するとどちらもうまく説明できる。同様の分散関係を予言するゲージ場揺らぎのモデルやマヨラナフェルミオンモデルとの関連が注目される。

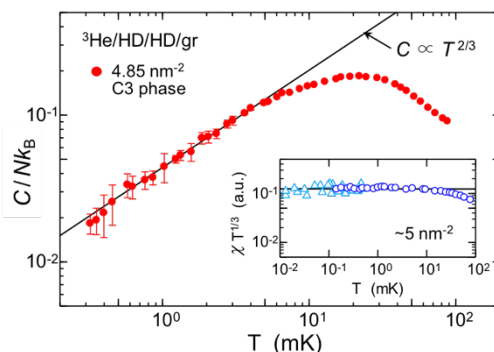


図3. 単原子層 ^3He ($^3\text{He}/\text{HD}/\text{HD}/\text{gr}$ 系) のC3整合相の磁気比熱。(挿入図) C3整合相の帯磁率(文献⑥⑦)。

以上、本研究では、グラファイト上単原子層 ^3He を舞台に、量子液晶相の提案とそれが示すギャップレス量子スピン液体磁性、新たな局在相の存在とそれが示すさらに新奇なギャップレス量子スピン液体状態の発見など多くの新たな知見が得られた。一方、ZYX基板を使ったNMR測定による単原子層 ^3He の2次元超流動探索は研究期間内にデータ取得まで至らなかったため、今後の課題である。

<引用文献>

- ① A. Casey et al., Phys. Rev. Lett. **90**, 115301 (2003).
- ② K. Ishida, H. Fukuyama et al., Phys. Rev. Lett. **79**, 3451 (1997).

- ③ H. Fukuyama, J. Phys. Soc. Jpn. **77**, 111013 (2008).
- ④ H. Godfrin, R. R. Ruel, and D. D. Osheroff, Phys. Rev. Lett. **60**, 305 (1988).
- ⑤ P. Corboz et al., Phys. Rev. B **78**, 245414 (2008).
- ⑥ H. Ikegami et al., Phys. Rev. Lett. **85**, 5146 (2000).
- ⑦ R. Masutomi et al., Phys. Rev. Lett. **92**, 025301 (2004).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 (計 7 件)

- ① Jun Usami, Nobuyuki Kato, Tomohiro Matsui, and Hiroshi Fukuyama: The Role of Substrate Roughness in Superfluid Film Flow Velocity, Journal of Low Temperature Physics, published online on Dec. 2018.
DOI: 10.1007/s10909-018-02119-w
- ② Sachiko Nakamura, Takenori Fujii, Shoji Matsukawa, Masayuki Katagiri, and Hiroshi Fukuyama: Specific heat, thermal conductivity, and magnetic susceptibility of cyanate ester resins - An alternative to commonly used epoxy resins, Cryogenics, **95**, 76-81 (2018).
<https://doi.org/10.1016/j.cryogenics.2018.09.001>
- ③ Sachiko Nakamura, Daisuke Miyafuji, Ryo Toda, Tomohiro Matsui, and Hiroshi Fukuyama: Characterization of Pyrolytic Graphite Sheet: A New Type of Adsorption Substrate for Studies of Superfluid Thin Films, Journal of Low Temperature Physics, **192**, 330-345 (2018).
<https://doi.org/10.1007/s10909-018-1983-3>
- ④ Sachiko Nakamura, Takenori Fujii, Shouji Matsukawa, Masayuki Katagiri, and Hiroshi Fukuyama: ⁴He permeation and H₂O uptake of cyanate ester resins - an alternative to commonly used epoxy resins at low temperature, Journal of Physics: Conference Series, **969**, 012080-1-6 (2018).
DOI: 10.1088/1742-6596/969/1/012080
- ⑤ Ryo Toda, Satoshi Murakawa, and Hiroshi Fukuyama: Design and expected performance of a compact and continuous nuclear demagnetization refrigerator for sub-mK applications, Journal of Physics: Conference Series, **969**, 012093-1-6 (2018).
DOI: 10.1088/1742-6596/969/1/012093
- ⑥ Sachiko Nakamura, Daisuke Miyafuji, Takenori Fujii, Tomohiro Matsui, and Hiroshi Fukuyama: Low temperature transport properties of pyrolytic graphite sheet, Cryogenics **86**, 118-122 (2017).
<http://dx.doi.org/10.1016/j.cryogenics.2017.08.004>
- ⑦ S. Nakamura, K. Matsui, T. Matsui, and H. Fukuyama, Possible quantum liquid crystal phases of helium monolayer, Physical Review B **94**, 180501(R) (2016).
DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.94.180501>

〔学会発表〕 (計 38 件)

- ① 福山寛：単原子層ヘリウム3で見つかった2種類の量子スピン液体状態、日本物理学会第74回年次大会 (九州大学、2019年3月14-17日) .
- ② Hiroshi Fukuyama: Novel quantum phases of helium confined in two dimensions from quantum liquid-crystal to spin-liquid, 12th International Conference on Cryocrystals and Quantum Crystals, (Wojanów, Poland, Aug.26-31, 2018).
- ③ Masahiro Kamada, Ryuji Nakamura, Katsuyoshi Ogawa, Tomohiro Matsui, and Hiroshi Fukuyama: New Quantum Spin Liquids in ³He Monolayer on Hydrogen Plated Graphite, International Symposium on Quantum Fluids and Solids (QFS2018), (The University of Tokyo, Tokyo, Japan, July25-31, 2018).
- ④ Hiroshi Fukuyama, Masahiro Kamada, Sachiko Nakamura: Recent Progress in Studies of Emergent Quantum Phases of 2D Helium Systems, International Conference on Ultra Low Temperature Physics (ULT2017): Frontiers of Low Temperature Physics (Heidelberg Germany, Aug.17-21, 2017).
- ⑤ 福山寛：単原子層ヘリウムの新奇量子相～量子液晶、超結晶、マヨラナ磁気素励起～、日本物理学会第72回年次大会 (大阪大学、2017年3月17-20日) .
- ⑥ Hiroshi Fukuyama, Sachiko Nakamura, Masahiro Kamada, Ryuji Nakamura, and Tomohiro Matsui: A possible quantum-liquid-crystal phase in helium monolayers adsorbed on graphite, International Conference on Quantum Fluids and Solids 2016 (QFS2016), (Prague, Czech Republic, Aug.10-16, 2016).
- ⑦ Hiroshi Fukuyama: Quantum Liquid, Solid and Liquid-crystal Phases of Helium in Two dimensions, Exploring Extreme Forms of Matter, (Hongo, The Univ. of Tokyo, Mar.14, 2016).

- ⑧ Hiroshi Fukuyama: Two-Dimensional Quantum Materials Physisorbed on Graphite, Physics of Interfaces and Layered Structures, (Stockholm, Sweden, Aug.24-Sept.11, 2015).
- ⑨ Masahiro Kamada, Ryuji Nakamura, Sachiko Nakamura, Ryo Toda, Tomohiro Matsui, and Hiroshi Fukuyama: Novel Features of the Quantum Spin Liquid State in 2D Solid ^3He , The international symposium on Quantum Fluid and Solids (QFS2015), (Niagara Falls, USA, Aug.9-15, 2015).
- ⑩ Hiroshi Fukuyama: Two-Dimensional Quantum Materials Physisorbed on Graphite, Grand Challenges in Quantum Fluids and Solids Workshop, (Univ. of Buffalo, USA, Aug.7-9, 2015).

[その他]

- ① 福山寛、松井朋裕、宇佐美潤、加藤伸行：NHK BSプレミアムの科学番組「コズミックフロント☆NEXT」シリーズの「ミステリー 宇宙で一番寒い場所」にて、超流動ヘリウムの実験と解説を行う（2016年6月2日放送）。
- ② 福山寛：低温ブツリガクと医療、第115回日本外科学会定期学術集会（名古屋国際会議場、2015年4月16-17日）。

6. 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名： 村川 智
ローマ字氏名：(MURAKAWA, Satoshi)
所属研究機関名： 東京大学
部局名： 低温センター
職名： 准教授
研究者番号(8桁)： 90432004

(2) 研究協力者

研究協力者氏名： 中村 祥子
ローマ字氏名：(NAKAMURA, Sachiko)

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。