

令和 2 年 6 月 18 日現在

機関番号：12102

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2019

課題番号：16K05432

研究課題名(和文) 2次元量子固体の構造操作による量子現象の発現と解明

研究課題名(英文) Study of Quantum Phenomenon Appeared with Structural Control in 2D Quantum Solids

研究代表者

森下 将史 (Morishita, Masashi)

筑波大学・数理物質系・准教授

研究者番号：90251032

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円

研究成果の概要(和文)：グラファイト上単原子層4He薄膜においてdomain wall(以下DW)のみが流動性を示すことを、直接検証することを目指し、水晶振動子を用いた動的応答測定を行った。4He薄膜の質量はslipにより振動子から離脱しているが、DWの出現が期待される吸着量でのみ、降温により0.4 K程度の温度域で再結合することが明らかとなった。これは、DW内の4Heが超流動転移し、slipに対し対向流を生じて質量離脱を抑制しているものと説明され、DWの超流動性を強く示唆する。さらに数10 mKで4He薄膜の全質量が再離脱する現象が観測され、超固体現象の可能性も含め、その起源の解明が必要である。

研究成果の学術的意義や社会的意義

ヘリウムは量子性の強い物質であり、固化の機構は通常の物質とは異なる。domain wallが固化しないことは理論予測されておらず、その流動性は固化の機構についての新たな情報を与える。また、原子スケールの規則的制限空間を与え、ここに溶解したフェルミ粒子である $^3\text{He}$ は、電子系において精力的な研究が為されている朝永-Luttinger液体やDirac粒子系として振る舞っている可能性が高く、電子系のカウンターパートとして新たな知見が期待できるものである。流動性が直接的に検証された意義は大きい。また、理論予測され探索が為されている超固体が示唆される点でも興味もたれる。

研究成果の概要(英文)：Fluidity inside the domain walls of adsorption structure of submonolayer 4He solid films on graphite has been proposed according to the results of heat capacity measurements. For a direct detection of the fluidity inside the domain walls, we have performed quartz-crystal microbalance measurements on submonolayer 4He films on graphite. The results revealed that submonolayer 4He films slip or decouple from the graphite substrate below at least 10 K. Only for higher areal densities where domain wall structure can appear, the mass of helium films coupled again with the oscillating substrate around 0.4 K. This behavior can be attributed to the suppression in slippage by the counterflow of superfluid inside the domain walls against the slipping solids, and strongly suggests the fluidity inside the domain walls. By decreasing the temperature further, the entire mass of 4He films decoupled again from the oscillating substrate. The origin of this observation has not been clarified.

研究分野：低温物理学

キーワード：量子流体・量子固体 ヘリウム 規則的制限空間 Dirac粒子系 朝永-Luttinger液体 吸着構造 domain wall 水晶マイクロバランス法

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。

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

原子レベルで平坦なグラファイト表面に吸着したヘリウム薄膜は、非常に良く定義された層構造をもち、一様性・平面性・独立性に優れ、2次元系のモデル物質を与える。このうち、1原子層目、即ちヘリウムの単原子層膜ではグラファイト基盤の吸着ポテンシャルの様子が明らかになっているため、吸着構造なども比較的明らかになっている。一方で、面密度(単位面積あたりの吸着原子数)を変化させると、流体相、整合固相、domain wall 構造、不整合固相と多彩な吸着構造が現れ、ヘリウムの強い量子性と相まって新規な現象の出現が期待される。

単原子層のヘリウム4 ( $^4\text{He}$ ) 薄膜についての知見を得るために、少量のヘリウム3 ( $^3\text{He}$ ) を溶解させて熱容量測定を行った結果、従来、固相と考えられていた面密度領域で有限の熱容量が観測され、面密度により温度或いは温度の自乗に比例する振る舞いが明らかとなった。 $^4\text{He}$  薄膜が固相であれば、 $^3\text{He}$  は局在し、その熱容量は非常に小さいことが期待される。一方、 $^4\text{He}$  薄膜が一樣に融解していれば、 $^3\text{He}$  は2次元 Fermi 流体として振る舞い、その熱容量は温度に比例する。温度の自乗に比例する、異常な熱容量は説明ができない。

ヘリウム薄膜の固化の機構に立ち返ると、大きな零点振動のために、単一の原子では吸着ポテンシャルの極小にはトラップされないが、面密度を増すと原子間のハードコア斥力のために、ポテンシャルの極小にトラップされ固化に至る。domain wall 内では、整合固相である domain 内と異なり、ヘリウム原子はポテンシャルの極小に吸着することはできないため、固化しにくい傾向にある。観測された異常な熱容量の起源として、domain wall のみが固化せず流動性を有しており、 $^3\text{He}$  がこの中を運動している可能性が考えられる。domain wall は数原子程度の幅をもつとともに規則性を有し、原子サイズ程度の規則的制限空間内の  $^3\text{He}$  が実現している可能性が指摘できる。即ち、比較的低面密度で出現する striped domain wall 構造では、domain wall は1次元的で、 $^3\text{He}$  は1次元 Fermi 流体或いは朝永-Luttinger 液体として振る舞い、温度に比例する熱容量を示す。一方、高面密度で出現する honeycomb domain wall 構造では  $^3\text{He}$  は蜂の巣構造内を運動し、graphene の電子系同様、Dirac 粒子系として振る舞い、線形分散のために温度の自乗に比例する熱容量を示している可能性が高い。honeycomb domain 構造では、朝永-Luttinger 液体の2次元ネットワークが実現し、温度の自乗に比例する熱容量が出現しているとの指摘もある。いずれにしても、興味深い研究の場を与える可能性が高いが、domain wall の流動性については理論予測もなく、この検証が急務である。

### 2. 研究の目的

グラファイト上に吸着した単原子層のヘリウム4 薄膜における domain wall の流動性を、動的応答測定により、直接的に検証することを目的とする。domain wall が流動性を示し、その内部を  $^3\text{He}$  が自由に運動していると考えられること、また熱容量測定が 80 mK 以下という非常に低い温度域で為されたことを考えれば、domain wall 内は単に流動性を有するだけでなく、超流動状態にあると考えられる。吸着薄膜の超流動は動的応答測定により、質量の離脱として捉えられる。domain wall という吸着薄膜の構造の一部のみが超流動性を示した際にも、動的応答測定による検出が期待できる。

### 3. 研究の方法

ヘリウム薄膜の動的応答測定には、一般的に、ねじれ振り子法が用いられ、非常に高感度で超流動転移を捉えることができる。しかし、グラファイトに限ると吸着基盤の接続性のためと考えられているが、超流動成分の質量の数%しか検出できず、domain wall という薄膜の一部分の流動性を捉えるには感度が不足する可能性が高い。一方、摩擦現象の研究に用いられる水晶振動子マイクロバランス法では、より多くの質量変化が実際に観測に掛かっている実績がある。この方法を用いて、超流動性の検証を行う。ここでは、共鳴周波数約 32 kHz の音叉型水晶振動子を用いることとし、この先端付近にグラファイトを多数劈開した Grafoil を取り付け、ここに低温で  $^4\text{He}$  を吸着させる。例えば、薄膜の一部が超流動に転移すれば、その分の質量は振動基盤から離脱し、その分、共鳴周波数が増大し検出することができる。

### 4. 研究成果

図1(a)に様々な面密度における共鳴周波数の温度変化を示す。この測定では水晶振動子を 20  $\mu\text{V}$  で駆動しており、実際の振幅は 2 nm 程度と見積もられる。薄い水色で示したものは、 $^4\text{He}$  を吸着する前の bara graphite での結果である。緩やかなピークやディップなどが見られるが、水晶振動子自身の質のためと考えられる。

ここに  $^4\text{He}$  を吸着させていくが、図1(a)からわかるとおり、共鳴周波数は 1~10 K では面密度(吸着量)を変えても、ほとんど変化していない。本来、 $^4\text{He}$  の吸着の分だけ質量が増えるため、共鳴周波数が下がることが期待される。見積もりでは 8  $\text{nm}^{-2}$  の面密度の吸着で 0.1 Hz 程度下がることが期待されるが、そのような大きな変化は観測されない。10 K 以上では、吸着膜の脱離のために蒸気圧が上昇し、振動子に大きな抵抗となることが観測されており、 $^4\text{He}$  が導入できていない訳ではない。共鳴周波数が面密度に依存しない理由は、ヘリウム膜と graphite 基盤の摩擦が小さく、slip を生じているためと考えられる。先行研究によると、 $^4\text{He}$  多層膜では、1原子層目は圧縮率が非常に小さいため、振動基盤に追従せざると得ないが、2原子目以上が1原子層目に対して slip を生ずる。多層膜では slip を生ずる温度は 1 K 弱の温度域であり、10 K

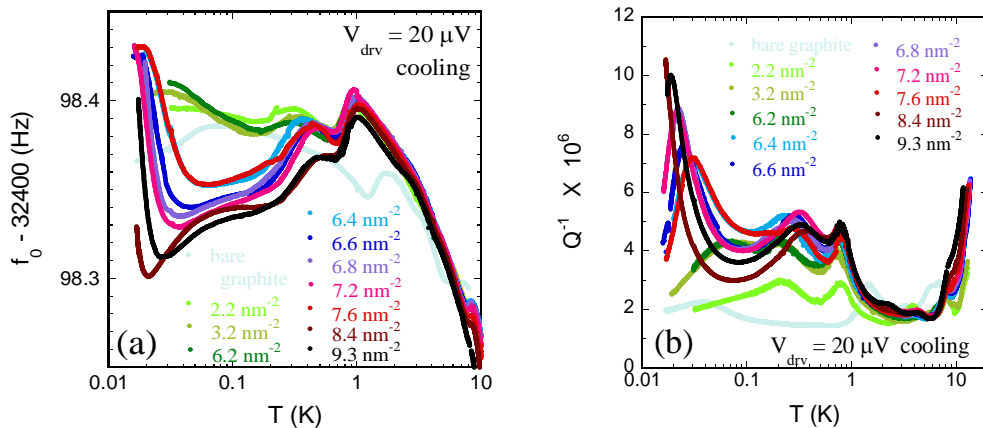


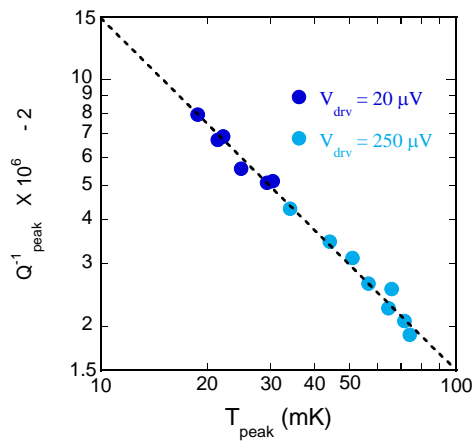
図1. グラファイト上単原子層  $^4\text{He}$  薄膜における水晶振動子マイクロバランス法を用いた動的応答測定の結果。(a) 共鳴周波数の変化は振動子に結合した質量についての情報を与える。(b) エネルギー散逸は振動子の質量の増減に対しピークを示す。

で既に slip を生じていることは驚きである。しかし、単原子層膜と多層膜では基盤が graphite と  $^4\text{He}$  単原子層と異なり、Debye 温度で象徴されるとおり堅さが全く異なる。原子レベルでの摩擦には phonon が寄与するため、Debye 温度の違いが、slip を生ずる温度の大きな違いを生ずるものと考えられる。一方、bare graphite に比べ、共鳴周波数がわずかながら大きくなっている。一見、質量が減少していることを意味し不可解であるが、これは、水晶振動子に微細な孔や傷が存在し、ここに  $^4\text{He}$  が吸着することにより弾性率がわずかに増大した結果と考えられる。また、面密度に依らずいくつかの温度で見られるピークやディップは水晶振動子自身に由来するものが、温度領域が変化して出現しているものと考えている。

緑色系の線で示した低面密度の試料では、1 K 以下の温度域で共鳴周波数がほとんど変化しないのに対し、高面密度では 0.4 K 以下の温度域で共鳴周波数が急激に減少している。この減少は、振動子とともに振動する質量の増大を意味する。即ち、slip によって離脱した質量が降温により、吸着基盤に再結合したことを意味する。観測された共鳴周波数の減少は、ほぼ  $^4\text{He}$  の全質量が振動基盤に再結合したとして符合する変化である。同様の共鳴周波数の減少は、 $^4\text{He}$  多層膜における先行研究でも観測されている。先行研究ではこの減少は、slip により離脱した質量が、吸着第 3 原子層の超流動転移により、再結合したものと解釈されている。即ち、吸着第 2 原子層目が 1 原子層目に対し slip を生ずるものの、3 原子層目が超流動転移すると 3 原子層目は 2 原子層目には追従せず対向流となる。結果、2 原子層目と 3 原子層目の重心は 1 原子層目といっしょに振動することになり、質量は振動基盤に結合することになる。本研究における単原子層膜においても、面内で slip する固体成分と対向流を生ずる超流動成分を考えることにより、質量が振動基盤に結合することが説明できる。即ち、整合固相 domain は slip を生じるのに対し、domain wall 内の  $^4\text{He}$  が超流動転移し、対向流を生じて質量の再結合が生じた可能性が考えられる。質量の減少が観測されているのは  $6.4 \text{ nm}^{-2}$  以上の面密度である。 $6.4 \text{ nm}^{-2}$  はまさに整合固相である  $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$  相の面密度であり、これ以上の面密度で domain wall 構造が出現する。domain wall の出現とともに低温で質量再結合することは、domain wall の超流動転移を強く示唆する結果である。

さらに降温すると、数 10 mK の温度域で、一旦減少していた共鳴周波数が急増している。高い温度から増大を始める面密度では、低温で一定値になっており、再びほぼ全ての  $^4\text{He}$  質量が振動基盤から再離脱したと考えられる。domain wall 内の  $^4\text{He}$  が超流動転移することに依り生じた対向流が低温で抑制されるとは考えにくい。低温で抑制される理由がないからである。例えば、超流動臨界速度の関与も考えられるが、臨界速度が低温で低下する理由がない。従って、質量再離脱は、domain wall だけでなく  $^4\text{He}$  全体が超流動転移したことを示唆している。しかしながら、このような低温で単原子層全体が融解して超流動転移するとは考えにくい。一つの可能性は、理論予測され、探索が為されている超固体である。超固体とは、波動関数の周期性を保ちつつ、超流動性を示す現象であり、零点空孔や余剰原子の非局在化により出現することが期待されている。domain wall を余剰原子と見なせば、この非局在化により超固体転移した可能性も考えられる。これについてはさらなる検証が不可欠であるが、興味深い現象である。

質量の結合・離脱には、共鳴周波数の変化だけでなく、エネルギー散逸  $Q^{-1}$  のピークが付随する。 $Q^{-1}$  の温度変化を図 1 (b) に示す。 $Q^{-1}$  は共鳴の鋭さを示す  $Q$  値の逆数であり、振動の抵抗係数に比例する量である。水晶振動子の駆動電圧は上で結果を示した  $20 \mu\text{V}$  の他に  $250 \mu\text{V}$  などでも測定を行ったが、駆動振幅を増やすと、共鳴周波数の変化も  $Q^{-1}$  のピークも鈍る傾向にある。特筆すべきは、数 10 mK における質量再離脱の際の  $Q^{-1}$  のピークが、駆動振幅を増すと高温にシフトする点である。質量再離脱した状態はより低温で現れている。これを基底状態と考えると、大振幅で駆動する、即ち、擾乱を与えるほど、より高い温度で基底状態に移行するこ



**図 2** .質量再離脱に伴うエネルギー散逸 $Q^{-1}$ のピークを与える温度とピークの高さの関係。散逸 $Q^{-1}$ からバックグラウンドを差し引くと、様々な面密度、2つの異なる駆動電圧で観測された結果から、反比例の関係が現れる。

とになり矛盾を生ずる。しかし、これは低温での質量離脱した状態が、振動により誘起された状態であることを示している。slip が低温で生じることと同様であるが、例えば、振動により domain wall が非局在化されている可能性も考えられる。図 2 に、幾つかの面密度、2つの駆動電圧で観測された、数 10 mK における質量再離脱の際の $Q^{-1}$ のピークについて、ピークを与える温度とピーク高の関係を両対数グラフで示す。きれいに反比例関係になっている。図 1 (b) に示したとおり、 $Q^{-1}$ のピークを与える温度は、面密度に対して複雑な変化を示している。それが、きれいに直線に載っている。この依存性は、低温で質量再離脱状態への移行が生じるほど、狭い温度幅で移行が生じていることを意味する。質量再離脱状態の起源の解明に情報を与えるものと期待している。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Morishita Masashi	4. 巻 187
2. 論文標題 Low-Temperature Heat Capacity of 4He Films on Graphite	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Journal of Low Temperature Physics	6. 最初と最後の頁 453 ~ 458
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1007/s10909-017-1759-1	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Masashi Morishita	4. 巻 1908
2. 論文標題 Fluidity in Domain Walls in Dilute 3He-4He Films on Graphite: Possible 1D Fermi Fluid and Dirac Fermions in Helium Film	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 arXiv	6. 最初と最後の頁 1991
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計12件（うち招待講演 1件/うち国際学会 3件）

1. 発表者名 Masashi Morishita, Masatoshi Umemoto, Junko Taniguchi and Masaru Suzuki
2. 発表標題 QCM Measurements on Submonolayer 4He Films on Graphite - fluidity inside domain walls -
3. 学会等名 International Conference on Quantum Fluids and Solids (QFS2018) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 森下将史、梅本匡敏、谷口淳子、鈴木 勝
2. 発表標題 グラファイト上ヘリウム単原子層薄膜における動的応答測定 II」
3. 学会等名 日本物理学会2018年秋期大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 森下將史
2. 発表標題 ヘリウム4単原子層膜におけるdomain wallの流動性
3. 学会等名 日本物理学会第47回年会（シンポジウム講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Chenhua Geng, Masashi Morishita, and Masaki Oshikawa
2. 発表標題 Band structure of a thin layer of Helium-3 on graphene
3. 学会等名 日本物理学会2017年秋季大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 梅本匡敏、森下將史
2. 発表標題 グラファイト上単原子層ヘリウム薄膜の固相領域における動的応答測定
3. 学会等名 日本物理学会2017年秋季大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Chenhua Geng, Masashi Morishita, and Masaki Oshikawa
2. 発表標題 Spectrum of honeycomb structure in monolayer Helium film on graphite
3. 学会等名 日本物理学会第73回年次大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 梅本匡敏、鈴木 勝、森下將史
2. 発表標題 グラファイト上ヘリウム単原子層薄膜における動的応答測定
3. 学会等名 日本物理学会第73回年次大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Masashi Morishita, Masatoshi Umemoto
2. 発表標題 Fluidity of Domain Walls in Dilute 3He-4He Mixture Monolayer Films
3. 学会等名 International Conference on Quantum Fluids and Solids (QFS2016) (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 梅本匡敏、森下將史
2. 発表標題 ヘリウム単原子層薄膜におけるDomain Wallの流動性
3. 学会等名 日本物理学会2016年秋季大会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 梅本匡敏、森下將史
2. 発表標題 グラファイト上ヘリウム4薄膜の低温熱容量
3. 学会等名 日本物理学会第72回年次大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Masashi Morishita, Masatoshi Umemoto, Junko Taniguchi and Masaru Suzuki
2. 発表標題 Quartz Crystal Microbalance Measurements of 4He Submonolayer Films on Graphite
3. 学会等名 International Conference on Quantum Fluids and Solids(QFS2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 柄澤聖吾、岡裕一郎、森下將史
2. 発表標題 音叉型水晶振動子を用いた低温用気体圧力計の開発
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担者	高木 丈夫  (Takagi Takeo)  (00206723)	福井大学・学術研究院工学系部門・教授   (13401)	