

機関番号：12601

研究種目：特定領域研究

研究期間：2005～2009

課題番号：17071002

研究課題名（和文） 2次元ヘリウムの量子物性

研究課題名（英文） Quantum physical properties in Two-Dimensional Helium

研究代表者

福山 寛 (FUKUYAMA HIROSHI)

東京大学・大学院理学系研究科・教授

研究者番号：00181298

研究成果の概要（和文）： 2次元強相関フェルミ粒子系のモデル物質である、グラファイト上吸着第2層目のヘリウム3単原子層の熱容量と核磁気共鳴測定を0.1 mKに至る超低温度まで行い、その低温量子相図を完成した。その結果、低密度での気-液相転移、フェルミ液体相のスピン揺らぎ効果、フェルミ液体相と低密度整合相の間に零点空格子点相が存在する可能性、低密度整合相でのギャップレススピン液体磁性、高密度非整合固相のフラストレート強磁性など多数の新奇量子相・量子現象が見出された。零点空格子点相では、2次元系にもかかわらずスピン-質量分離が起こり得ることも理論的に分かった。

研究成果の概要（英文）： We have established the low-temperature quantum phase diagram of monolayer helium-three adsorbed on graphite, a model system for highly correlated fermions in two-dimensions, by carrying out heat-capacity and nuclear-magnetic-resonance measurements down to 0.1 mK. The phase diagram involves many novel quantum phases or phenomena including the gas-liquid transition at low densities, the spin fluctuation effects in the Fermi liquid phase, a possible zero-point vacancy phase at densities in between the Fermi liquid and the low-density commensurate phases, the gapless spin-liquid magnetism in the low-density commensurate phase, and the frustrated ferromagnetism in the high-density incommensurate phase. We have also found theoretically the possibility of spin-mass separation in the zero-point vacancy phase even in two-dimensions.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
平成 17 年度	19,000,000	0	19,000,000
平成 18 年度	64,200,000	0	64,200,000
平成 19 年度	39,000,000	0	39,000,000
平成 20 年度	25,600,000	0	25,600,000
平成 21 年度	15,400,000	0	15,400,000
総計	163,200,000	0	163,200,000

研究分野： 低温物理学

科研費の分科・細目： 数物系・物理学・物性Ⅱ

キーワード： 低温物性、量子流体、フラストレーション、強相関、超流動、多体交換相互作用、フェルミ液体、低次元系

1. 研究開始当初の背景

グラファイト表面に吸着させることで2次元空間に閉じ込めた単原子層ヘリウム3 (以下、2次元 ^3He) について、研究代表者の福山や研究分担者の森下、小形 (平成20年度途中から連携研究者に変更) らが、さまざまな新奇量子相・量子現象の可能性を議論していた。そのうち代表的なものは以下の二つである。

(1) 2層目の ^3He は、1層目の単原子層固体ヘリウムの作る周期ポテンシャルに整合した構造で粒子密度比が4:7の低密度局在相 (以下、4/7相) を形成することが知られていた。福山らは、この4/7相直下の密度域の予備的な熱容量測定から、既存のフェルミ流体論では説明できない、スピン自由度と運動自由度が共存する奇妙な振る舞いを報告していた。ここでは、絶対零度でも結晶中を量子力学的に運動する“零点空格子点” (以下、ZPV) が安定的に存在する相やそれが周囲に誘起するスピン状態など興味深く原理的な問題が潜んでいる可能性が高い。例えば、正方格子のようなbipartite格子上を運動するZPVが周囲のスピンを強磁性的に揃えることは長岡強磁性として知られていたが、2次元 ^3He のように三角格子 (non-bipartite格子) の場合どのような磁性を誘起するかは、未解決の問題である。小形らは、 t - J モデルを解析して、三角格子でRVB状態 (スピンに関する原子価共鳴状態) が誘起されることを示唆していた。また、ボース粒子系である単原子層ヘリウム4にもZPV相が存在すれば、“固体の超流動状態 (超固体) ”、すなわち結晶の周期性と超流動性が共存するまったく新しい物質状態が実現する期待も福山によって指摘されていた。

(2) 以前より、福山や森下らは4/7相の磁気基底状態が“ギャップレス量子スピン液体”という特異な状態であることを主張してきた。この状態は、その後、本特定領域A01イ班の研究分担者である鹿野田 (平成20年度より連携研究者) らによって、ET型2次元有機化合物の金属-絶縁体転移近傍でも見出されたことで、これらを量子臨界点近傍のフラストレーションの強い格子上の強相関フェルミオン系の一般的な性質として捉えるという視点が認識され始めていた。同班の今田 (研究代表者) らは、ハバードモデルの経路積分くりこみ群法を使って、フラストレーションが大きいときの液体-固体 (金属-絶縁体) 転移がギャップレス量子スピン液体状態を生むことを初めて理論的に示して注目されていた。

2. 研究の目的

本研究の目的は2次元Heの低温極限における新奇な量子物性を調べることである。

具体的には以下の通りである。

(1) グラファイト表面に物理吸着した単原子層 ^3He の量子局在点近傍で見出された新しい量子相を、超低温域での熱的・磁氣的測定によって詳しく調べる。

(2) 単原子層 ^3He の面密度を変えて粒子相関を精密制御することで、さらなる新量子相や未発見の2次元超流動状態の探索を行う。

(3) ボース粒子系の2次元固体 ^4He において出現が期待される超固体状態を実験的に探る。

(4) これらの実験結果を、種々の方法による理論計算と比較し、強く相互作用する2次元フェルミ粒子系の一般的で新しい物理概念を明らかにする。

3. 研究の方法

2次元 ^3He の強相関効果について、実験・理論の両面から多角的に調べ、両者を詳しく比較することで、その本質に迫った。

(1) 福山は、2次元 ^3He の量子相図の全体像を明らかにするため、東京大学の核断熱消磁冷凍機を使って2-4原子層までの広い密度範囲で熱容量と核磁気共鳴 (NMR) 測定を行った。これら熱的および磁氣的測定を互いに定量的に比較するために、吸着第1層は非磁性の ^4He とした試料を両測定で共通して用いた。これは吸着基板の不均一効果を低減する上でも有効である。また、強磁性試料のNMR共鳴線に現れる反磁場効果を解析することで、基板の不均一性をより定量的に評価する手法も開発した。

(2) 森下は筑波大学の核断熱消磁冷凍機を使って、熱容量測定から4/7相のギャップレススピン液体状態を集中的に調べた。一つの手法は、4/7相の ^3He を非磁性の ^4He で置換することで、三角格子からカゴメ格子への移行を試みた。また、試料に外部磁場を印加したときの低温熱容量の変化を測定し、磁場による抑制効果を調べることで磁気フラストレーションの大きさを評価した。

(3) 福山は慶応大学の白濱と柴山 (本特定領域A01ウ班の研究代表者と分担者) との共同研究で、 ^4He の4/7相近傍でねじれ振り子実験を行い、超固体的な振る舞いを探った。その際、振り子の振幅を変えたときの超流動レスポンスの変化を調べた。これは臨界速度の有無 (あるいは大小) に関係して、重要な実験情報である。

(4) 3次元固体 ^3He では3体および4体のリング交換相互作用が重要な役割を果たして

いることが知られており、これは剛体球からなる（近距離斥力のある）He 原子系に特有の強相関効果である。そこで、小形らは電子系強相関物質に対して有効な t - J モデルに 4 スピンのリング交換相互作用 (K) を取り入れた t - J - K モデルを初めて提案し、強相関の効果を検討したグッツウィラー近似と平均場近似によってどのような項が現れるかを調べた後、少数系に対する厳密対角化の手法で詳しく調べた。一方、4/7 相のフラストレート磁性を調べる別の手法として、三角格子とカゴメ格子の複合格子に対するハイゼンベルグモデルを立て、これを高温展開の手法で解析した。

4. 研究成果

(1) グラファイト上に吸着した第 2 層目 ^3He について、広い温度と面密度範囲にわたる熱容量と NMR の測定を行い、その低温量子相図を完成し、以下に述べる種々の新奇な量子相・量子現象を見出した(福山担当)。以下、 n は 2 層目 4/7 整合相に対する相対的な全面密度である。

① $n \leq 0.07$: 2 次元 ^3He は強い量子効果と低次元性のため多体凝縮（液化）しないと信じられてきた。しかし、従来にない低密度域かつ十分フェルミ縮退した低温域の熱容量を測定したところ、第 2 層目は、ごく低密度 ($0.5\text{-}0.6 \text{ nm}^{-2}$) の自己凝縮相すなわち 2 次元液滴（パドル）を形成することを見出した。

② $0.1 \leq n \leq 0.8$: 系はこの密度範囲で 2 次元フェルミ液体として振る舞う。準粒子有効質量は裸の ^3He 原子質量の 1.1 倍から 7 倍まで増強する。その間、低温極限の帯磁率の大きさも約 20 倍増強するが、3 次元液体 ^3He で論争となった Paramagnon モデルと Almost localized モデルのどちらが 2 次元 ^3He に対してより適応できるかについて決定的な結論は得られなかった。一方、比熱の γT 項に対する最低次の補正項は T^2 であり、2 次元のスピンの揺らぎに関する理論予測と一致することが判明した。

③ $0.8 \leq n \leq 1$: 従来この密度域は高密度流体相と 4/7 相の 2 相共存域と考えられてきた。しかし、本研究の詳細な熱容量測定の結果は、単純な 2 相共存では説明できない異常な振る舞いを見せている（図 1）。これを説明するため、強相関効果によって 2 次元 ZPV バンドが形成され、低温で ZPV の量子流体相が実現するというモデルを提唱した。また、エントロピーの解析から、これまで 1 次元電子系でしか知られていなかったスピン-電荷分離に類

似したスピン-質量分離が 2 次元系でも起きている可能性も指摘した。測定したスピン-スピン緩和時間 (T_2) の密度変化は単純な 2 相共存モデルと矛盾しているようにみえるが、吸着基板の単結晶子の有限サイズ効果の問題が残っているため、ZPV 仮説の十分な検証には至っていない。

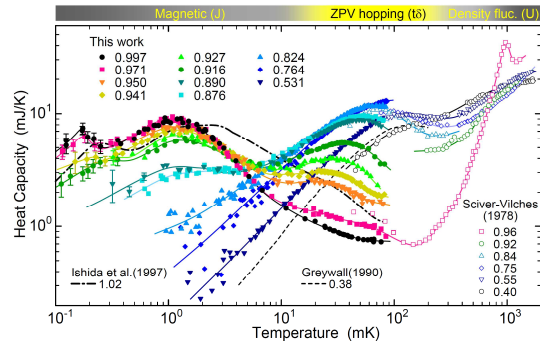


図 1 4/7 相より少し低密度域 ($0.8 \leq n \leq 1$) のグラファイト上 2 層目 ^3He の熱容量測定の結果。

④ $n = 1$: T_2 の温度変化を測定し、温度の低下に伴ってスピンの短距離相関が発達し、 T_2 が滑らかに減少する様子、すなわち対称性の破れを伴わないクロスオーバー的な振る舞いを観測した。これは、4/7 相の磁気基底状態がギャップレススピン液体状態とする従来の我々の主張を支持する結果である。

⑤ $1 \leq n \leq 1.2$: 2 層目 (①) と同様に 3 層目低密度域にもパドル相が存在することが分かった（図 2）。図中縦軸の γ は、熱容量が温度に比例する縮退温度域での比例係数である。この実験結果は、少なくとも 20% の過剰粒子に対して 4/7 相の構造が安定であることを示しており、同相が整合局在相であること

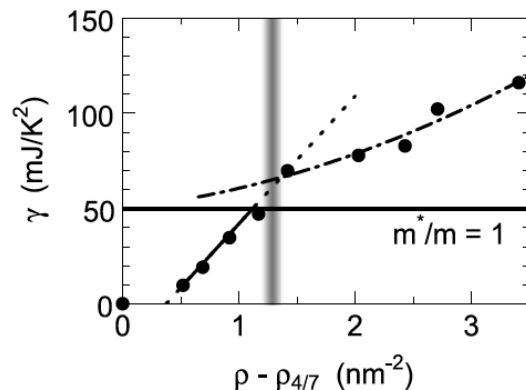


図 2 4/7 相より少し高密度域 ($1 \leq n \leq 1.2$) のグラファイト上 2-3 層目 ^3He の熱容量測定の結果（論文 5）。

を強く支持している。

⑥ $1.2 \leq n \leq 1.4$: 3層目パドル相の面積が成長して表面全体を覆い様液体となると、それ以上の過剰粒子に対して2層目4/7整合相が構造的に不安定となり、より高密度の不整合相への一次相転移が起こることが分かった。この密度域は、その共存状態である。

⑦ $1.4 \leq n \leq 2.4$: この密度域で2層目は高密度不整合相の単相である。高密度の極限では、理想的な $S = 1/2$ 三角格子ハイゼンベルグ強磁性体多体の実現していることが、理論計算との定量的な比較で明らかになった。この強磁性相互作用の起源が3体交換相互作用にあることは、3次元固体³Heの核磁性の知見からほぼ確実である。そこから少しずつ密度を低下してゆくと、4体以上のリング交換や2体交換が3体交換相互作用と競合するようになる。すなわち、密度を変えることで、単純なハイゼンベルグ強磁性状態にフラストレーションを制御して導入することができる(基底状態は強磁性のまま)。

⑧ $2.1 \leq n \leq 2.2$: 4層目の低密度域にもパドル相が存在することが分かった。下層の周期ポテンシャルやグラファイト表面からの距離など、それぞれ置かれた環境が大きく異なる2層目、3層目、4層目がいずれもほとんど同じ、しかも非常に低密度の2次元液体に自己凝縮するという事実は、これが純粋な2次元³Heの性質であることを強く示唆している。従来の変分モンテカルロ計算など第一原理計算は、いずれも2次元³Heは液化しない(気-液相転移が存在しない)という予想をしているので、それらに再検討の必要を迫る実験結果ということができる。

(2) 森下は、4/7相の磁性に的を絞って熱容量測定を行い、以下の結果を得た。

① 交換相互作用に比べてかなり低い磁場を印加することで4/7相の低温比熱が顕著に変化することを見出した。これは、系のフラストレーションが非常に大きいことを示している。

② ³He-4/7相の粒子数の1/4, 1/2, 3/4を⁴Heで置換したときの熱容量を測定した。混合エントロピー由来の比熱を解析したところ、高木(本特定領域公募班研究代表者)によって提唱された4/7整合相の新しい配列の方がElserが提唱した従来の配列より実験をうまく説明することが分かった。さらに、⁴He置換量を増すと流体相の割合が増えることから、純粋⁴Heは純粋³Heと異なり4/7相として局在しない可能性を指摘した。最近の経路積分モンテカルロ計算も同様の主張をしているた

め、この問題は今後、電子線散乱実験などで直接確認する必要がある。

③ グラファイト上³He吸着層の2次元熱伝導が、スピン素励起やフォノンにより伝搬されていることを示唆する実験結果を得た。

(3) 柴山、福山、白濱は、⁴He-4/7相の直下の密度域でねじれ振り子実験を行い、200 m K以下の温度で⁴He試料の一部が振り子の慣性率に寄与しなくなる、いわゆる超流動レスポンスを観測した。これは、コーネル大学のReppyらの先行実験を追試するものであるが、彼らが調べていなかった超流動レスポンスの振幅依存性も調べたところ、これが観測された。これは臨界速度の存在を示唆するもので、もしこの密度域で系の並進対称性が破れているならば(固体としての性質を保持しているならば)、超固体の一つの証拠となる。しかし、上述したように、⁴Heは4/7相に局在せず、当該密度で液相にとどまるとする実験的・理論的な示唆もあり、その決着は今後の研究課題である。

(4) 小形の行った理論計算の代表的な成果を二つ以下に説明する。

① 4スピンのリング交換相互作用を取り入れた t - J - K モデルを詳しく調べた結果、パラメータ相図(図3)中に2次元のスピンの質量分離を伴うエキゾチックな量子相(図中III)が出現することが判明した。当該のパラメータ領域は、2次元³Heの他の性質(ワイス温度など)も説明できる。また、プラケット近似を使って、4体スピン交換がスピンの質量分離を誘起する定性的な説明も与えている。図3は $n = 0.9$ に対する計算結果であるが、 $n = 1$ (4/7相)ではスピン液体相が現れる点も実験を説明する。

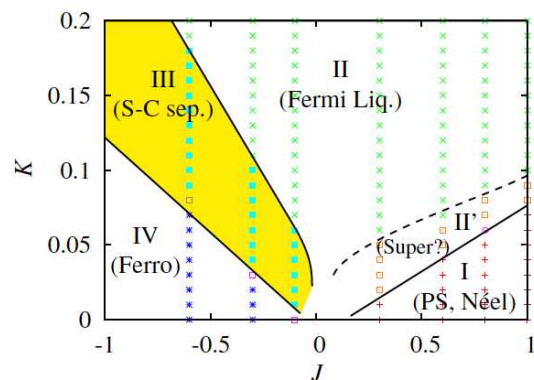


図3 t - J - K モデルを厳密対角化法で調べたときの基底状態(論文13)。

② 多体のリング交換モデル以外に4/7整合相のフラストレート磁性を説明する一つの可能性として、三角格子上でサイト別に2種

類の交換相互作用をもつハイゼンベルグ模型を取り上げ、その性質を高温展開法で調べた。その結果、幾何学的フラストレーションの効果として、このモデルでも実験で観測された比熱のダブルピーク構造や低温に向かって緩やかに上昇し続ける帯磁率の温度変化は説明可能であることが分かった。一方、このモデルでギャップレススピン液体という基底状態を再現できるかどうかは自明でなく、今後の研究課題である。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 49 件)

1. "Surface Observation and Magnetization Measurements of Grafoil Substrate", M. Morishita, J. Low Temp. Phys. **162**, 638-644 (2011).
2. "Thermal Relaxation in ^3He Solid Films on Graphite", M. Morishita, J. Low Temp. Phys. **158**, 666-671 (2010).
3. "Density Variation of the Frustrated Ferromagnetism in 2D Solid ^3He ", D. Sato, S. Takayoshi, K. Obata, T. Matsui and H. Fukuyama, J. Low Temp. Phys. **158**, 544-549 (2010).
4. "Determination of the Mosaic Angle Distribution of Grafoil Platelets Using Continuous-Wave NMR Spectra", S. Takayoshi and H. Fukuyama, J. Low Temp. Phys. **158**, 672-677 (2010).
5. "Evidence for a Self-bound Liquid State and the Commensurate-Incommensurate Coexistence in 2D ^3He on Graphite", D. Sato, D. Tsuji, S. Takayoshi, K. Obata, T. Matsui and H. Fukuyama, J. Low Temp. Phys. **158**, 201-206 (2010).
6. "Spin-Echo Measurements for an Anomalous Quantum Phase of 2D Helium-3", S. Takayoshi, K. Obata, D. Sato, T. Matsui, and H. Fukuyama, J. Phys.: Conf. Series **150**, 032104-1-4 (2009).
7. "Localized Distributions of Quasi-Two-Dimensional Electronic States near Defects Artificially Created at Graphite Surfaces in Magnetic Fields", Y. Niimi, H. Kambara and H. Fukuyama, Phys. Rev. Lett. **102**, 026803-1-4 (2009).
8. "Fermi-Surface Reconstruction in the Periodic Anderson Model", H. Watanabe and M. Ogata, J. Phys. Soc. Jpn. **78**, 024715-1-8 (2009).
9. "Thermodynamic properties of the Heisenberg model on a triangular lattice with two exchange couplings: Application to two-dimensional solid ^3He adsorbed on graphite", T. Koretsune, M. Udagawa, and M. Ogata, Phys. Rev. B **80**, 075408-1-5 (2009).
10. "Nagaoka ferromagnetism in large-spin fermionic and bosonic systems", S. Miyashita, M. Ogata, and H. D. Raedt, Phys. Rev. B **80**, 174422-1-6 (2009).
11. "Heat Capacity of ^3He Solid Films on Graphite in Weak Magnetic Fields", M. Morishita, J. Phys.: Conf. Series **150**, 032065-1-4 (2009).
12. "Heat Capacity of Kagome ^3He Monolayer Film on Graphite", M. Morishita, J. Phys.: Conf. Series **150**, 032066-1-4 (2009).
13. "Phase Diagram of the Triangular t-J Model with Multiple Spin Exchange in the Doped-Mott Region", Y. Fuseya and M. Ogata, J. Phys. Soc. Jpn. **78**, 013601-1-4 (2009).
14. "Nuclear Magnetism in Two-Dimensional Solid Helium Three on Graphite", H. Fukuyama, J. Phys. Soc. Jpn. **77**, 111013-1-12 (2008).
15. "Heat Transfer between ^3He Solid Films and Graphite in Magnetic Fields", M. Morishita, J. of Low Temp. Phys. **148**, 767-771 (2007).
16. "Fermi-Surface Reconstruction without Breakdown of Kondo Screening at the Quantum Critical Point", H. Watanabe and M. Ogata, Phys. Rev. Lett. **99**, 136401-1-4 (2007).
17. "Possibility of Gapless Spin Liquid State by One-dimensionalization", Y. Hayashi and M. Ogata, J. Phys. Soc. Jpn. **76**, 053705-1-5 (2007).
18. "Construction of a versatile ultralow temperature scanning tunneling microscope", H. Kambara, T. Matsui, Y. Niimi, and H. Fukuyama, Rev. Sci. Instrum. **78**, 073703-1-5 (2007).
19. "Heat Capacity of Dilute ^3He - ^4He Fluid Mixture Monolayer Films on Graphite", *M. Morishita, Proceedings of the 24th International Conference on Journal of Low Temperature Physics (LT24), AIP Conf. Proc. Ser. **850**, 327-328 (2006).
20. "Real-space imaging of alternate localization and extension of quasi-two-dimensional electronic states at graphite surfaces in magnetic fields", Y. Niimi, H. Kambara, T. Matsui, D. Yoshioka and H. Fukuyama, Phys. Rev. Lett. **97**, 236804-1-4 (2006).
21. "Characterization of two-dimensional fermionic insulating states", R. Shindou, K.-I. Imura and M. Ogata, Phys. Rev. B **74**, 245107-1-18 (2006).
22. "Scanning tunneling microscopy and spectroscopy of the electronic local density of states of graphite surfaces near monoatomic step edges", Y. Niimi, T. Matsui, H. Kambara, K. Tagami, M. Tsukada and H. Fukuyama, Phys. Rev. B **73**, 085421-1-8 (2006).

23. "Interaction of the ground state of quarter-filled one-dimensional strongly correlated electronic system with localized spins", C. Hotta, M. Ogata and H. Fukuyama, Phys. Rev. Lett. **95**, 216402 (2005).
24. "Anomalous heat capacities in submonolayer solid ^3He films commensurate to graphite substrate", M. Morishita, J. Phys. Chem. Solids **66**, 1425-1428 (2005).

[学会発表] (計 479 件)

1. H. Fukuyama: "Strong correlations and frustrated magnetism in two dimensional helium three", 11th German-Japanese Symposium "New Quantum States and Phenomena in Condensed Matter", (Hiroshima, Sep. 13-16, 2010).
2. H. Fukuyama: "Landau Quantization of Dirac and Schrödinger Fermions at Graphene and Graphite Surfaces", India-Japan Conference on "Graphene" (Bangalore, India, Nov. 17-18, 2009).
3. D. Sato: "Evidences for a Self-Condensed Liquid State and the Commensurate-Incommensurate Coexistence in 2D ^3He on Graphite", International Symposium on Quantum Fluids and Solids (QFS2009), (Evanston, USA, Aug. 5-11, 2009).
4. Y. Shibayama: "Torsional Oscillator Studies of Non-Classical Rotational Inertia in Two-Dimensional ^4He Solid", International Symposium on Quantum Fluids and Solids (QFS2009) (Evanston, USA, Aug. 5-11, 2009).
5. H. Fukuyama: " ^3He in Two Dimensions –A strongly correlated Fermion system–", Frontiers of Low Temperature Physics (ULT2008) (London, UK, Aug. 14-17, 2008).
6. H. Fukuyama: "Frustrated magnetism and strong correlation effects in 2D ^3He ", Strong Correlation in Materials and Atom Traps (Trieste, Italy, Aug. 4-15, 2008).
7. H. Fukuyama: "A Possible New Quantum Fluid of Atomic Vacancies", IOP Condensed Matter and Materials Physics Conference (Leicester, UK, Apl. 13, 2007).
8. H. Fukuyama: "Scanning tunneling spectroscopy of thin graphites and their step edges", Graphene Workshop (Leiden, The Netherlands, Feb. 5-9, 2007).
9. H. Fukuyama: "Nuclear Magnetic Orderings and Frustration in BCC ^3He in High Magnetic Fields", The International Conference on Ultra-Low Temperature Physics (ULT2005) (Gainesville, Florida, USA, Aug. 18-20, 2005).
10. H. Fukuyama: "Novel Quantum Phases in 2D ^3He Near Localization", 24th International Conference on Low Temperature Physics (LT24) (Orlando, Florida, USA, Aug. 10-17, 2005).

[その他]

ホームページ等
研究室ホームページ
http://kelvin.phys.s.u-tokyo.ac.jp/fukuyama_lab/

および本特定領域ホームページ

<http://www.superclean-materials.org/>

において、日本語と英語の両方で、本研究で得られた研究成果の発表内容、ハイライトなどを紹介した。

6. 研究組織

(1)研究代表者

福山 寛 (FUKUYAMA HIROSHI)
東京大学・大学院理学系研究科・教授
研究者番号：00181298

(2)研究分担者

森下 将史 (MORISHITA MASASHI)
筑波大学・大学院数理工学物質科学研究科・助教
研究者番号：90251032

(3)連携研究者 (平成 17～20 年度途中まで研究分担者)

小形 正男 (OGATA MASAO)
東京大学・大学院理学系研究科・教授
研究者番号：60185501