論文の内容の要旨

論文題目: Quantum Phase Diagram of Helium Three Monolayer on HD Plated Graphite

(HD 膜を敷いたグラファイト上単原子層ヘリウム3の量子相図)

氏名鎌田雅博

グラファイト基板上に吸着したヘリウム3(³He)単原子層膜は、スピン 1/2 をもつ電荷 のない2次元フェルミオンの研究の舞台として理想的な系である。この系は低温(< 3 K)で ³He ガスを導入することでサンプルを作成するため、ヘリウム以外の物質が混入することな く極めて清浄な試料を作成することが可能である。また³He ガスの導入量を調整するだけ で、格子欠陥等を導入することなく、大きく面密度を変化させることができるのも大きな 利点である。³He 単原子層膜はその面密度により様々な量子相を形成することが知られてお り [1,2]、低密度側から、自己凝集液体相 [3]、フェルミ液体相、低密度固体相、不整合固 体相といった異なる量子相が実現する。

³He の核スピンは原子の直接交換を介して相互作用するが、³He 原子のハードコアポテン シャルの干渉を避けるため3つ以上の原子が同時に交換する多体交換相互作用(MSE)が 重要となる [4]。このとき偶数交換は反強磁性的、奇数交換は強磁性的な相互作用なので、 これらの競合が磁気フラストレーションを生み出す。この相互作用の競合は低密度ほど顕 著になる [4]。吸着第2層目に実現する低密度固体相(C2 相)では、下地の周期ポテンシャル と³He 間に働くハードコア的な相互作用によって、1 層目との面密度比が 4/7 になる整合固 体相であると考えられてきた。これは、バルク ³He には対応する状態が存在しない2次元 へリウムに特有の量子相である。C2 相は三角格子による幾何学的な効果と MSE の競合によ って非常に強くフラストレートしており、比熱では 90 μ K ($T/J \approx 0.01$) や帯磁率の測定で は 10 μ K($T/J \approx 0.001$)に至る超低温まで磁気秩序も励起のスピンギャップも示さず [5,6]、 その基底状態は絶対零度でもスピンが固まらず揺らぎ続ける"ギャップレス量子スピン液体"であることが知られている。ただし、低温比熱の *C* ∝ *T* の振る舞いが観測された温 度範囲は十分広いとは言えず、これが真に低温極限の振る舞いなのか確証はなかった。

³He 単原子層膜が局在する面密度は、その下地の原子層や分子層の格子間隔を変えること で操作することが可能である。なかでも2層 HD 分子を敷いた上の³He 単原子層膜 (³He/HD/HD/gr)は、ヘリウムよりも20%以上低密度な2層目 HD に対応して局在する密 度が最も小さい [7,8]。低い密度は³He の交換相互作用 J を増大させるため、この系は低温 極限での性質を調べるのに適していると期待されるがこれまでその熱力学特性は十分な低 温まで調べられていない。また相図全体についても2層目³He と比較してあまり詳細な研 究がないのが現状である。

そこで我々は、³He/HD/HD/gr が形成する最も低密度な局在相の低温極限での性質、及び ³He/HD/HD/gr の磁気相図を明らかにすることを目的とし、この系について広い面密度範囲 ($0.10 \leq \rho \leq 13.63 \text{ nm}^{-2}$)及び温度範囲 ($0.16 \leq T \leq 90 \text{ mK}$)に渡って熱容量(C)測定を 行った。特に、局在転移近傍の密度(5 nm^{-2} 付近)については精密な測定を行った。その際、 低密度域の熱容量を詳細に調べることで、グラファイト基板の結晶粒界付近に偏在する乱 れた ³He 成分 ($T \in LU = T = 3$)の寄与の温度依存性と密度変化を評価することで、本来 の測定対象である基板の平坦部分に吸着した 3He のみの性質を、より信頼性の高い密度ス ケールとともに議論できるようになった。これは、過去の測定 [8] よりも低温まで熱容量 測定を行ったことと並んで本研究の大きな特色のひとつである。

 $\rho \ge 5.05 \text{ nm}^2$ の面密度では熱容量は広い温度範囲にわたるなだらかなピークをもち、 その形を大きく変えないままピークが低温側にシフトする様子が観測された。このことか ら、少なくとも $\rho = 5.9 \text{ nm}^2$ 程度まで約 17%の圧縮性のある単一相(C2-like 相)である と考えられる。比熱ピークの構造等に違いはあるものの、C2-like 相の磁気比熱は低温で C2 相と同じ $C \propto T$ になり、また面密度を増やすと熱容量が2層³He-C2 相のそれに近づくよ うに見えることから、両者は同じような相であると考えられる。C2-like 相の大きな圧縮性 は2層へリウムの C2 相が実は整合相ではなく部分的に対称性が破れた"量子液晶"である という最近の主張 [9] に合致する。

より高い面密度域(9.33 $\leq \rho \leq 13.63 \text{ nm}^2$)では強磁性的な熱容量が観測され、過去の帯 磁率測定 [10] とも符合する。ここから高密度息では 2 層³He と同じく下地に不整合な三角 格子の ³He 固体相が実現していると考えられる。不整合固相はヘリウムの原子間相互作用 の寄与が大きくなり、下地の周期ポテンシャルは平均化されてその影響を大きく受けない と期待されるので、これは自然に理解できる。

一方、 $\rho = 4.74 \text{ nm}^2$ 付近では、これまで報告された事のない新しい量子相を発見した(C3 相)。その近傍で詳細に熱容量の密度依存性を調べると、2%以下の狭い面密度範囲で存在し、 両側が2つの共存領域で Fermi 液体及び C2 相と隔てられている。この事実から C3 相は"真の"整合固体であることが期待される。 2層 ³He 系がまだ液体相であるような低密度で整

合相が安定化する理由として、下地の HD が作る周期ポテンシャルの振幅が2倍程度大きい ことが挙げられる。

さらに我々は、この C3 相の磁気熱容量が $0.3 \leq T \leq 6 \, \text{mK}$ の1桁以上の温度範囲にわ たって温度の 2/3 乗に比例する非常に特徴的な温度依存性を示すことを発見した。過去の 帯磁率測定の結果 [6,10] をこの新たな視点から再解析し、密度スケールの補正も施したと ころ、C3 相近傍では帯磁率 [6,10] が $0.01 \leq T \leq 10 \, \text{mK}$ の3桁に渡る温度範囲で温度の -1/3 乗という、やはり特異な分数冪の温度依存性を示すことを見出した。これらの結果は、 C3 相の磁気基底状態が新種のギャップレススピン液体であることを示しており、マヨラナ フェルミオン等の新奇な素励起過程をもつ可能性が考えられる。

低密度領域 $(0.7 \le \rho \le 4.2 \text{ nm}^2)$ においては、フェルミ液体に特徴的な $C = \gamma T$ の振る 舞いが観測された。この比例係数 γ から求められる ³He 準粒子の有効質量密度と共に上昇 し、4.2 nm⁻² で 4.4 ± 0.3 に達する。固化が始まる付近での振る舞いを調べると、先行研究 [12] が主張するスケーリング則に則ったモットハバード転移のシナリオとは異なる結果が 得られた。

最後に、最も低密度の領域 (0.10 $\leq \rho \leq 0.7 \text{ nm}^2$) において、熱容量の係数 γ 相互作用 の無い自由フェルミ気体での係数 γ_0 を下回ることから自己凝集液体が形成していると結 論付けた。臨界密度 (0.7 nm⁻²) はグラファイト上に吸着された 1-3 層目で観測された気液 転移と定量的に良く一致する。気液転移は下地のポテンシャルにより安定化するのではな く 2 次元 ³He 系の本来の性質とする先行研究 [3] の主張と一致する。

- [1] D. S. Greywall, Phys. Rev. B. 41, 1842 (1990).
- [2] H. Fukuyama, J. Phys. Soc. J. 77, 111013 (2008).
- [3] D. Sato, K. Naruse, T. Matsui, H. Fukuyama, Phys. Rev. Lett. 109, 235306 (2012).
- [4] M. Roger, Phys. Rev. B 30, 6432 (1984).
- [5] K. Ishida, M. Morishita, K. Yawata, H. Fukuyama Phys. Rev. Lett. 79, 3451 (1997).
- [6] R. Masutomi, Phys. Rev. Lett. 92, 025301 (2004).
- [7] M. Siqueira, C. P. Lasher, B. P. Cowan, J. Saunders, Phys. Rev. Lett. 71, 1407 (1993).
- [8] A. Casey, H. Patel, J. Nyeki, B. P. Cowan, J. Saunders, J. Low Temp. Phys. 113, 265 (1998).
- [9] S. Nakamura, K. Matsui, T. Matsui, H. Fukuyama, Phys. Rev. B 94, 180501 (2016).
- [10] H. Ikegami, R. Masutomi, K. Obara, H. Ishimoto, Phys. Rev. Lett. 85, 5146 (2000).
- [11] D. Sato, S. Takayoshi, K. Obata, T. Matsui, H. Fukuyama, J. Low Temp. Phys. 158, 544 (2010).
- [12] A. Casey, H. Patel, J. Nyeki, B. P. Cowan, J. Saunders, Phys. Rev. Lett. 90, 115301 (2003).



図.1 2層 HD 上の³He 単原子層膜の断面 図。グラファイト基板は上部3層のみ示してあ る。



図.2 我々が新たに発見した C3 相の比熱。実線は $C \propto T^{2/3}$ を示す。インセットは熱容量を $T^{2/3}$ で割ったもの。C2-like 相、強磁性の不整 合固相の比熱も比較してある。



図.3 本研究から決定した ³He/HD/HD/gr の量子相図。上図は全体の相図。高密度の IC は不整合固体相。下図は C3 相付近の等温熱容量と今回の研究から決定した相図。 図中の太線が C3 相 (ρ = 4.74 nm⁻²)。