

論文内容の要旨

論文題目 熱容量測定による 2 次元ヘリウム 3 の強相関効果の研究

(Heat Capacity Studies of Strong Correlation Effects
in Two-dimensional ^3He)

氏名 松本洋介

グラファイト表面上に物理吸着したヘリウム(He)原子は、基盤の強い吸着ポテンシャルに閉じ込められて低温で理想的な 2 次元単原子層を形成し、吸着量の増加とともに layer by layer で成長することが知られている。特にフェルミ粒子である ^3He の吸着第 2 層には、低面密度側から順に、フェルミ流体相、下地(第 1 層目)に対する整合相、不整合固相がそれぞれ存在し、超低温において数々の興味深い量子多体現象を示す。

2 層目の整合相は $4/7$ 相と呼ばれ、図 1 に示すように 1 層目に対して $4/7$ の密度比をもつ 3 角格子を形成している信じられている[1]。この系は 3 角格子という幾何学的なフラストレーションに加えて、多体交換相互作用の競合のため、極めてフラストレーションの強い核スピン $1/2$ の 2 次元量子スピン系である。過去に行われた熱容量測定[2]で、このスピン系が最低温度($90 \mu\text{K}$)まで有限温度相転移を示唆するような異常を示さず、特徴的なダブルピーク構造をもつこと等が観測され、 $4/7$ 相の磁気的な基底状態としてギャップレスの量子スピン液体状態が提案されている。最近の帯磁率測定[3]もこれを支持する結果となっている。この系はまた、1 層目を ^4He や HD2 層に変更することで、 $4/7$ 相の格子間距離を変えることが実験的に可能という特徴もある(以後、これら異なる 2 次元 ^3He 系を $^3\text{He}/^4\text{He}/\text{gr}$ 、 $^3\text{He}/\text{HD}/\text{HD}/\text{gr}$ 等と表す)。

一方、流体相は低密度での理想的な 2 次元フェルミ気体から、密度の増加とともに、有効質量の増大した強く相互作用するフェルミ流体へとその振る舞いを変えることが知られている。この系の最大の特徴は、電子系の諸物質と異なり、disorder を一切導入すること無しに、粒子密度すなわちキャリア濃度を広範囲に変えることができる点である。最近、 $^3\text{He}/\text{HD}/\text{HD}/\text{gr}$ 系の流体相に対する熱容量測定が 1 mK の低温まで行われ[4]、流体相から $4/7$ 相への相転移が Mott -

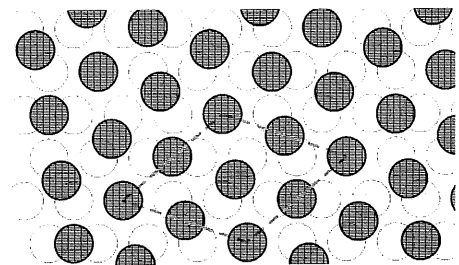


図 1: $4/7$ 整合相。灰色の丸が吸着第 1 層で格子模様が吸着第 2 層。破線は単位胞を示す。

Hubbard 型の量子局在転移としてよく記述できるとする主張がなされた(4/7 相ごく近傍の密度では、流体相-4/7 相に相分離するとの主張)。

本研究では、フェルミ流体相から 4/7 相への移行が、真に基底状態といえるような超低温度でどのように観測されるかを探るために、グラファイト上に 1 層 ^4He をプレコートした上に吸着した 2 次元 ^3He ($^3\text{He}/^4\text{He}/\text{gr}$ 系)の熱容量を $100 \mu\text{K} \leq T \leq 80 \text{ mK}$ の 3 桁弱におよぶ広い温度範囲で測定した。測定は低密度域から 4/7 相に至る広い密度範囲をこれまでにない細かいステップで行った。この系の有利な点は、他系と比べて 4/7 相の格子間距離が短いため交換相互作用が小さく、スピン交換相互作用に由来する熱容量と高温の運動の自由度に由来する熱容量の寄与がよく分離できることである。また、基盤の不均一部分にアモルファス状に吸着した ^3He 原子が非磁性の ^4He によって置換され、その影響を除去できるという効果もある。

図 3、4 に熱容量の測定結果を示す。300 μK 以上の温度域では断熱ヒートパルス法を、1 mK 以下の温度域では緩和法によって、それぞれ熱容量を測定した。 $\rho = 5.70 \text{ nm}^{-2}$ 以下の低密度域(図 2)では、充分低温で熱容量は温度によく比例しており、フェルミ縮退していることが分かる。ただし、その比例係数 γ は密度の増加とともに 6 倍まで大きくなる。2 次元系では γ 値は密度には比例せず準粒子有効質量 m^* にのみ比例するので、実験結果は、密度とともに 2 次元フェルミ気体(図中破線)から相互作用の強い、すなわち m^* の大きなフェルミ流体へと次第に移行することを示している。しかし、相互作用が m^* に繰り込み可能という点で、この領域は“正常フェルミ流体相”ということができる。なお、 $\rho = 5.70 \text{ nm}^{-2}$ のときの熱容量の T -linear 項に対する補正は、比較的広い温度範囲($10 \leq T \leq 80 \text{ mK}$)で T^2 項で表すことができる。これは特定の波数モードをもたない 2 次元強磁性スピン揺らぎを乱雑位相近似で取り入れた数値計算[5]と一致する。

ところが、 $\rho = 5.70 \text{ nm}^{-2}$ 以上の高密度域を調べてみると状況がかなり異なることが分かった。すなわち、 γ 値の増加は頭打ちになる一方、30 mK 以上の高温の熱容量の大きさが急速に小さくなるのである。それと歩調を合わせるように、低温部($T \approx 1 \text{ mK}$)に緩やかなピークが成長してくることも分かった。1 mK というのはスピン自由度に由来する交換相互作用程度の温度である(以下、これをスピン熱容量と呼ぶ)。このスピン熱容量の寄与が密度の増加とともに大きくなる

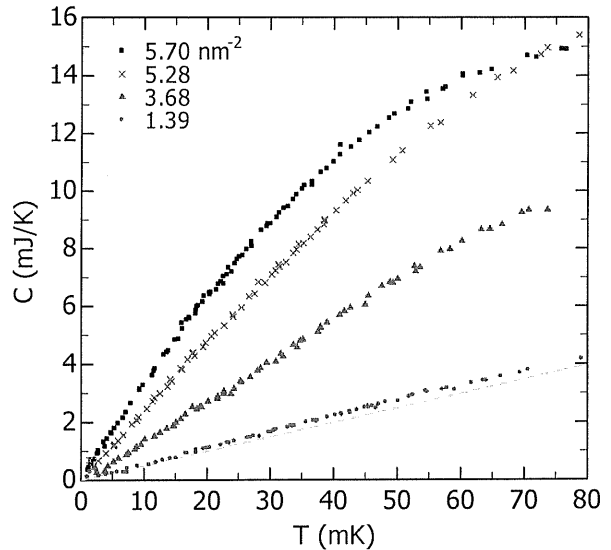


図 2: 2 次元 ^3He の正常 Fermi 流体領域における熱容量の測定結果。破線は 2 次元のフェルミ気体の熱容量。グラフォイル吸着基盤の表面積は 559 m^2 。

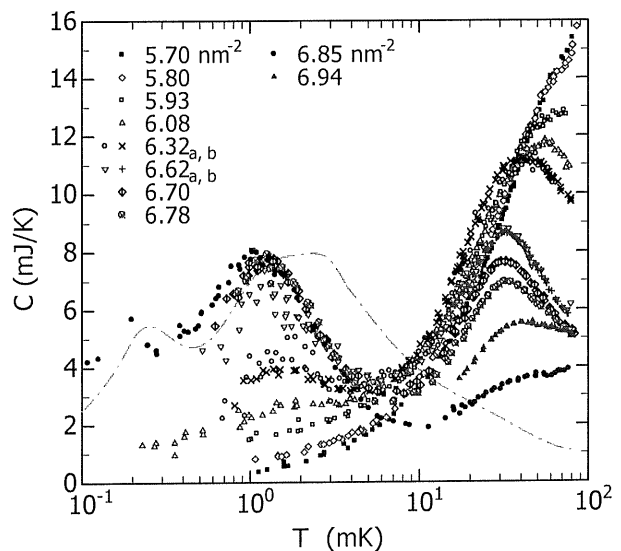


図 3: 2 次元 ^3He の異常流体領域および 4/7 Mott 局在相の熱容量。一点鎖線は $^3\text{He}/^3\text{He}/\text{gr}$ 系の 4/7 相の熱容量[2]を本実験の表面積(559 m^2)にスケールしたものを。

一方で、30 mK付近には依然として大きくなだらかなピークが、4/7相の密度($\rho_{4/7} = 6.85 \text{ nm}^{-2}$)近傍、少なくとも $\rho = 6.78 \text{ nm}^{-2}$ までは存在し続けるという実験事実は、これまでの実験的および理論的知見からすると大変異常な振る舞いである。以下、この $5.70 \leq \rho \leq 6.85 \text{ nm}^{-2}$ の領域を“異常流体相”(あるいは臨界領域)と呼ぶ。従来この領域は、詳しい密度依存性が調べられていなかったにもかかわらず、ある密度の正常フェルミ流体相と4/7相の2相共存域(相分離域)と考えられていた。しかし、図3を見れば、我々のこの領域の熱容量データが両者の線形結合ではまったく表せない、つまり、従来考えられていたような単純な2相共存では説明できないことは明らかである。

本研究では、4/7相を half filled の Mott 局在相として捉え、これより少し低密度の領域(異常流体相)が Mott 局在相に空格子をドーブした状態と見なし、系の自由度が空格子のホッピングによって記述できることを提案する。すなわち、異常流体相は一様相で相分離しておらず、この系では正常フェルミ流体相 \rightarrow 異常流体相 \rightarrow 4/7Mott 局在相という連続的な移行が実現しているという考えである。この場合、Mott-Hubbard 模型のオンサイト斥力 U は ^3He 原子間の剛体球斥力であり、その大きさは4/7相の order-disorder 転移温度(= 1K)[6]程度と見積もられる。一方、スピンの交換相互作用 J の大きさは約 1 mK であるから、ホッピング t は $t \sim \sqrt{UJ}/2 \sim 16 \text{ mK}$ と見積もることができる。つまり、この系は $U/t \sim 60$ と非常に相関の強い系であることが分かる。また、高温側の異常流体相のなだらかな熱容量ピークの温度($\sim 30 \text{ mK}$)は t の値と符合する。

このような強相関極限に適用可能な理論の確立は、銅酸化物高温超電導の発見以来、急務となっているが、現在のところ決定的なものはない。しかし、強相関極限で比較的良く成り立つとされる t - J 模型を3角格子系に適用して、その熱力学量を高温展開の手法で計算した最近の結果[7]によると、Mott 絶縁相にホールドーブすると系のフラストレーションが緩和されて、スピンエントロピーが高温側に移動することが指摘されている。これは我々の異常流体領域のデータで、 $\rho_{4/7}$ から密度を下げる程(すなわち空格子ドーブ量を増す程)スピン熱容量のピーク温度が高温側に徐々にシフトすることと定性的に合致している。ただし t - J 模型の範囲では、実験で見出された 30 mK の緩やかな熱容量ピークの存在は説明できないようである[8]。

一方、3角格子上 Hubbard 模型に対する最近の経路積分繰り込み群計算[9]によれば、Mott 局在相の磁気基底状態は $U/t \geq 5.2$ の強相関域でギャップレススピン液体となり、 $2\text{D}^3\text{He}$ の実験結果と符合する。この手法によるホールドーブ域の熱力学量の計算が待たれるところである。

図4は1~10 mK以上の我々の高温データから求めた m^* の密度依存性である。正常フェルミ流体領域では、 $^3\text{He}/^4\text{He}/\text{gr}$ 系の4/7相の密度 $\rho_{4/7}$ ($= 6.85 \text{ nm}^{-2}$) に向かって m^* は発散的に増加する傾向をみせている。一方、 $^3\text{He}/\text{HD}/\text{HD}/\text{gr}$ 系では $\rho_{4/7}$ の値が 5.2 nm^{-2} と小さいので、より低密度で発散傾向が見られる[4]。したがって、本研究の実験データは Mott-Hubbard 転移のシナリオを強く支持している。

これに対し異常流体領域では、系が一様相であるとの仮定の下で高温側の熱容量の山の γ 値より求めた m^* は、発散的な挙動からずれ始め、 6.32 nm^{-2} で極大値をとり、その後は4/7相に向かって急速に減少している。この異常な振る舞いが、低温

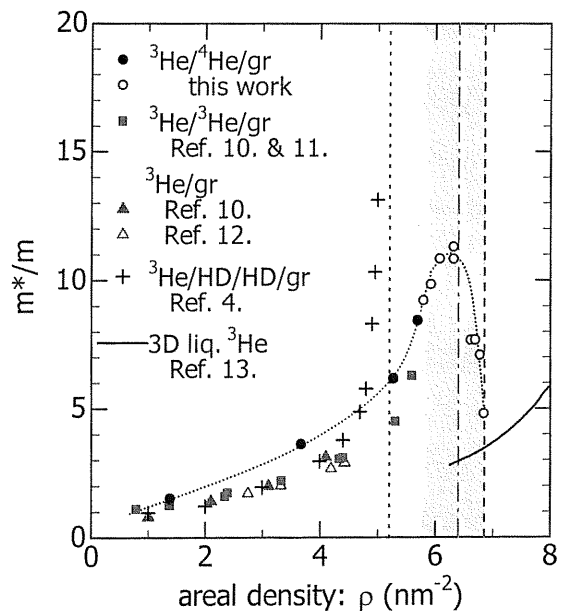


図4：熱容量測定から求めた ^3He 準粒子有効質量 m^* の面密度依存性。縦軸に平行な3本の直線は、種々の系で4/7相が完結する密度(点線： $^3\text{He}/\text{HD}/\text{HD}/\text{gr}$ 、一点差線： $^3\text{He}/^3\text{He}/\text{gr}$ 、破線： $^3\text{He}/^4\text{He}/\text{gr}$)。灰色の帯状の部分は異常流体領域。

になるにつれスピンと運動の自由度を同時に失ってゆく正常フェルミ流体相から、スピン自由度のみ生き残ったスピノン流体相へ移行する過程に対応するのか、あるいは 2 次元の“スピン-質量分離”(1 次元強相関電子系で見出されているスピン-電荷分離に相当)を示すものなのか、今後のさらなる実験、理論両面の研究を待たねばならない。しかし、本研究が示した強相関 2 次元フェルミオン系の新たな一面は、その本質を理解するために大きな手がかりになるに違いない。

本研究で明らかになった別の重要な知見として、 ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}/\text{gr}$ 系でも ${}^3\text{He}/{}^3\text{He}/\text{gr}$ 系と同様に 4/7 相のスピン熱容量のダブルピーク構造が観測されたことが挙げられる。このことから、系が異なっても 4/7 相の基本的な磁氣的性質は変わらないこと、つまりダブルピーク構造が 4/7 相に本質的なものであることが分かる。また図 4 を見ると、 ${}^3\text{He}/{}^3\text{He}/\text{gr}$ 系と比較してスピン熱容量の山が全体的に低温側に 4 割程度シフトしているが、これは剛体球系における交換相互作用 $|J|$ の密度依存性からも定量的に理解できる。

なお本論文の前半では、2 次元 ${}^3\text{He}$ の熱容量測定を含む種々の超低温実験を可能とする、銅の一段核断熱消磁冷凍機的设计と製作について詳述した。この装置は、全長が高さ方向に 1.7 m とコンパクトであるにもかかわらず、直径 160 mm、高さ 190 mm の十分な大きさの実験空間を確保しているのが特徴である。

${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$ 希釈冷凍機を使って 2 日で核ステージを 8 T の磁場中で 14 mK まで予冷した後、断熱消磁冷却したときの核ステージ温度と熱容量セル温度の時間推移を示したのが図 5 である。このときの核ステージの到達最低温度は 51 μK で、熱スイッチを介して冷却する熱容量セルの最低温度は 71 μK であった。核ステージへの熱流入は 2 nW 程度で、200 μK 以下の超低温度を保ちつつ、1 週間以上にわたって熱容量測定や核磁気共鳴測定などの物性実験を行うことが可能である。これらの数字は、本装置が世界でも有数の高性能核断熱消磁冷凍機であることを示している。

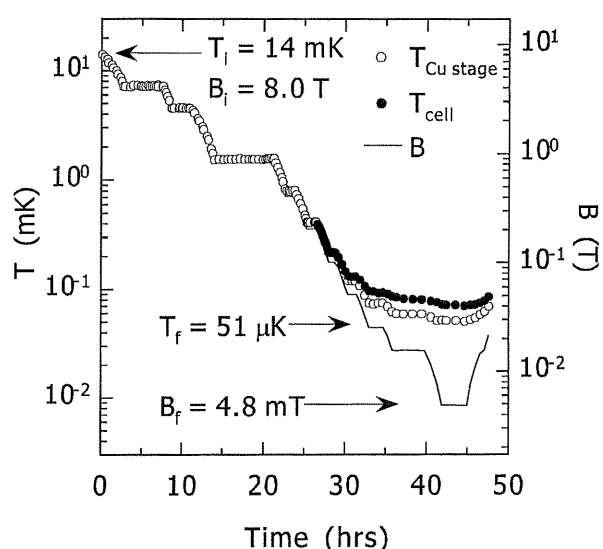


図 5 : 建設した核断熱消磁冷凍機が最低温度を発生した際の冷却曲線。

参考文献

- [1] V. Elser, Phys. Rev. Lett. **62**, 2405 (1989).
- [2] K. Ishida, M. Morishita, K. Yawata, H. Fukuyama, Phys. Rev. Lett. **79**, 3451 (1997).
- [3] R. Masutomi *et al.*, *to be published in Phys. Rev. Lett.*
- [4] A. Casey, H. Patel, J. Nyéki, B. P. Cowan and J. Saunders, Phys. Rev. Lett. **90**, 115301 (2003).
- [5] M. Ogura and H. Namaizawa, J. Phys. Soc. Jpn. **66**, 3706 (1997).
- [6] S. W. Van Sciver and O. E. Vilches, Phys. Rev. B **18**, 285 (1978).
- [7] T. Koretsune and M. Ogata, Phys. Rev. Lett. **89**, 116401 (2003).
- [8] T. Koretsune and M. Ogata, *private communication*.
- [9] M. Imada, T. Mizusaki and S. Watanabe, *to appear*.
- [10] D. S. Greywall, Phys. Rev. B **41**, 1842 (1990).
- [11] D. S. Greywall and P. A. Busch, Phys. Rev. Lett **65**, 64 (1990)
- [12] E. O. McLean, Ph. D. thesis, University of Washington, 1972 (*unpublished*).
- [13] D. S. Greywall, Phys. Rev. B **33**, 7520 (1986).