

平成 22 年 3 月 31 日現在

研究種目：特定領域研究

研究期間：2005～2009

課題番号：17071010

研究課題名（和文）ヘリウムナノ構造における新しい量子多体現象

研究課題名（英文）Novel Quantum Many-Body Phenomena in Helium Nanostructures

研究代表者

白濱 圭也 (SHIRAHAMA KEIYA)

慶應義塾大学・理工学部・教授

研究者番号：70251486

研究成果の概要（和文）：本研究では、ヘリウム(^4He)を多孔体に閉じこめて「ナノ構造」を実現し、そこに発現する新しく特異な量子多体現象を多様な実験により明らかにすることを目指した。中でも次元性やランダムネスを制御した様々なナノ構造において、「圧力誘起量子超流動転移」を観測し、これが「局在ボース凝縮体」の形成に伴って起こる、「ナノスケールヘリウム」に普遍的な現象であることを示した。また、ナノスケール固体 ^4He および薄膜において超流動的挙動を観測し、結晶中原子空孔やアモルファス状態が関与する新しい超流動現象の同定を進めた。本研究を通じて、ヘリウムナノ構造が「スーパークリーン・ボース粒子系」としての普遍性・創発性を持つことが示された。

研究成果の概要（英文）：We studied and searched for novel quantum many-body phenomena in “ ^4He Nanostructures”, in which ^4He is confined in nano-porous materials with various sizes, topological structures, and disorder. Pressure – induced quantum phase transitions (QPT) were observed, and they are related to the formation of “Localized Bose-Einstein condensates”. Superfluid-like behaviors in solid ^4He (supersolidity) are observed in such nanostructure systems and in thin solid ^4He layer. We revealed that Helium Nanostructures are an interesting model system of “super-clean Bosons”, which provides “universality and emergence” in condensed matter physics.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2005年度	60,300,000	0	60,300,000
2006年度	24,000,000	0	24,000,000
2007年度	10,400,000	0	10,400,000
2008年度	8,700,000	0	8,700,000
2009年度	5,200,000	0	5,200,000
総計	108,600,000	0	108,600,000

研究分野：物理学

科研費の分科・細目：物性II

キーワード：ヘリウム、超流動、量子相転移、ボース粒子、量子液体、量子固体、超流動固体、ナノ多孔体

1. 研究開始当初の背景

液体・固体ヘリウムは「**強相関量子多体系**」として重要ユニークな研究対象であり、原子相関による新しい量子効果の発現が期待される。原子相関効果の研究には、次元性・粒子密度を系統的に制御できる系の創成が重要であり、我々は「**ナノ多孔体構造**」に閉じこめたヘリウムによりこれを実現することを目指した。原子サイズの10倍程度のナノ空間に閉じこめることで、系の次元性、原子間相互作用、乱雑さを自由自在に制御できる。こうして創られる「ヘリウムナノ構造」は、アルカリ原子気体、ナノ電子系、強相関電子系等に比肩する新たな物理概念を生み出す。

本研究の最も重要な動機は、孔径2.5 nmのナノ細孔を持つ多孔質ガラスに閉じこめた ^4He の物性の解明にあった。この系では超流動性は加圧によって絶対零度まで抑圧され消失し、超流動相と固体相の中間に、**新たな量子相**が存在すると期待される。これはヘリウム原子の強い相関、量子揺らぎ、多孔構造のランダムネス等の要素が絡み合った、新しい強相関効果の発現と考えられ、その解明が最重要課題であった。

また本研究期間中に、固体 ^4He の「超流動」的挙動が発見され、低温物理学の最重要課題として浮上した。そこで本研究ではバルク固体 ^4He の超流動挙動の追試実験および性質の解明を行うと共に、2次元固体 ^4He 薄膜およびナノ多孔体中に形成された固体 ^4He における新しい超流動状態の探索を行った。

2. 研究の目的

本研究はヘリウムナノ構造の新しい物理現象を探索・解明することを目的とし、慶應大の白濱・柴山と電気通信大の鈴木が密接に協力して、図に示す「**スーパークリーン強相関ボース系**」の創成と新しい物理の探求を進める。

(1) **新しいスーパークリーン・ボース系の創成** 上記 ^4He ナノ構造の研究に加え、量子性を制御可能な ^4He - ^3He 混合体、さらに水素分子(H_2)によるナノ構造を創成し、ユニークな量子現象を発掘する。

(2) **多孔体制御による新しいナノ構造の**

開拓 多孔体の空間次元性・ランダムネス・細孔径を制御し、ヘリウムナノ構造の新しい可能性を追求する。

(3) **多様な測定手段による量子物性研究** 比熱、超音波、ねじれ振り子、圧力等の測定手段を有機的に組み合わせ徹底した物性測定を行い、ボースガラス・超流動固体相などの新状態の解明を進める。

3. 研究の方法

上記の研究背景・目的に基づいて、慶応大および電気通信大の2グループで実験技術を互いに供与しながら研究を進めた。ナノ多孔体として、(1)孔径2.5nmのナノ細孔が3次元ランダムネットワークを形成するGelsil多孔質ガラス、(2)直径5nmの空孔が規則正しく配列し、その間が2.5nmのパイプで3次元的に繋がった、周期的ナノ多孔体HMM-3、(3)孔径2-5nm可変の1次元細孔を持つFSM多孔体、の3種類を主に使用した。両グループ併せて、本研究費で導入したものも含めて希釈冷凍機6台を使用し、ねじれ振り子・超音波による超流動特性および動的性質の測定と、熱容量および定積圧力測定による低エネルギー励起、ボース凝縮に伴う熱力学異常、固体液体相境界の同定を行った。

また、固体 ^4He の超流動的挙動の解明にあたっては、超音波およびねじれ振り子を用いた動的実験を行った。

4. 研究成果

(1) **ナノ多孔質ガラス中 ^4He の量子相転移と局在BEC状態**

孔径2.5nmのナノ細孔の3次元ランダムネットワークに閉じこめた ^4He の相図を、ねじれ振り子・熱容量・定積圧力の測定から図1のように決定した。超流動転移温度 T_c の著しい抑圧と消失(量子相転移的挙動)が、超流動相と固体相の間に「局在したボース・アインシュタイン凝縮(BEC)状態」が生じることによって起こることを、定積圧力と熱容量の測定から疑いなく検証した。であると解釈される。局在BEC状態とは、細孔中の ^4He が局所的にはBECを起こすが、全体として凝縮体の位相がコヒーレントでないために超流動を示さない

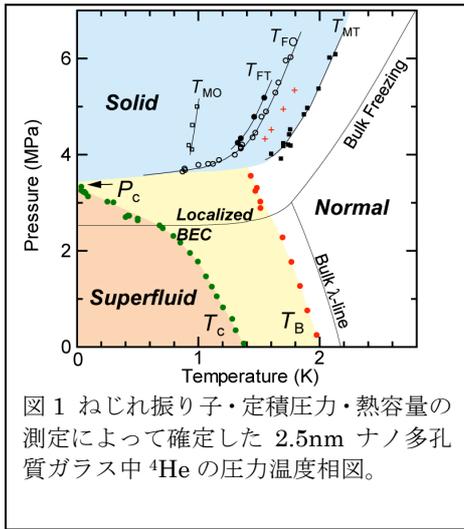


図1 ねじれ振子・定積圧力・熱容量の測定によって確定した 2.5nm ナノ多孔質ガラス中 ^4He の圧力温度相図。

状態であり、 ^4He 粒子の細孔への閉じ込めや多孔体の形成するランダムポテンシャルによって引き起こされ得る。従って、ナノ多孔体に閉じこめた ^4He では、「超流動」と「ボース・アインシュタイン凝縮」が異なる温度で生じるといふ、大変興味深く新奇な性質が明らかにされた。

この位相揺らぎによる局在 BEC 発現の機構は、Emery らが酸化物高温超伝導体のアンダードープ領域での擬ギャップ状態を説明するために提唱したアイデアと同じで、局在 BEC が擬ギャップ状態に対応している。ナノ多孔体中 ^4He と強相関電子系の興味深い類似性として注目される。

また、高圧力域での T_c の圧力依存性が、試料やその熱処理により大きく変わることから、多孔体試料の細孔構造の微妙な違いに極めて敏感であることを見出した。これは局在 BEC から巨視的超流動への T_c を決めるメカニズムを解明するための手がかりを与える重要な結果である。

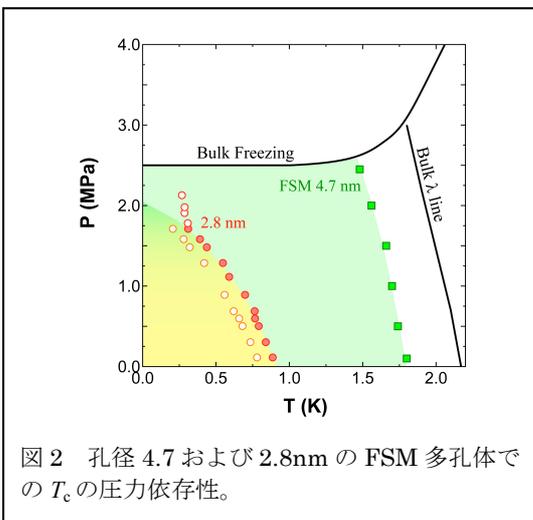


図2 孔径 4.7 および 2.8nm の FSM 多孔体での T_c の圧力依存性。

(2) 1次元ヘリウムの量子相転移

孔径 2 から 5nm の細孔が 1 次元的アレイを形成する FSM-16 ナノ多孔体に ^4He を閉じこめて超音波・ねじれ振子・熱容量によって超流動特性と熱力学的性質を調べ、孔径 3nm 以下の場合に量子相転移を観測した(図 3)。これはまっすぐな擬 1 次元細孔でも量子相転移が観測されることを初めて示した重要な成果であり、細孔構造が超流動性や位相揺らぎに与える効果を解明する上で強力な手がかりを与える。

(3) 周期的ナノ構造における ^4He の量子相転移

細孔構造の乱れが量子相転移に与える影響を調べるため、直径 5nm の空孔が規則正しく配列し、その間が 2.5nm のパイプで 3 次元的に繋がった、周期的ナノ多孔体 HMM-3 に ^4He を閉じこめ、相図を図 4 のように決定した。高い圧力域で超流動が急激に抑圧され、ランダム多孔構造と同様の量子相転移的挙動が観測された。

以上のように、ランダム系、周期系、1次元系という、乱れやトポロジーが異なる 3 種類のナノ多孔構造で量子相転移が観測された。従って、量子相転移がヘリウム原子の閉じ込めと相関によって生じる「普遍的」な現象であることが示された。これは驚くべきことであるが、我々の目論見通り、ヘリウムナノ構造が「強相関ボース粒子系」の普遍性と創発性を有することを示しており、本研究の最も重要な成果であると言える。

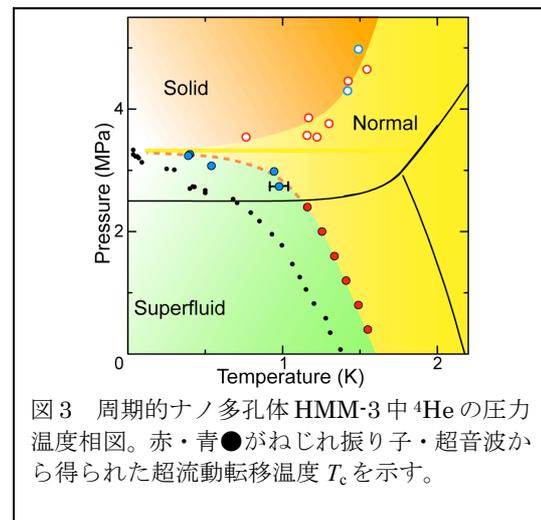


図3 周期的ナノ多孔体 HMM-3 中 ^4He の圧力温度相図。赤・青●がねじれ振子・超音波から得られた超流動転移温度 T_c を示す。

(4) 固体 ^4He の超流動的挙動

バルク固体 ^4He で注目されている超流動的挙動を調べ、低温で慣性率の減少を観測し ($T \leq 200$ mK)、“固体の超流動性”の追試実験に初めて成功した。さらにねじれ振子実験における固体 ^4He の超流動挙動は、結晶成長速度やアニール温度に大きく依存することが分かった。この現象には結晶中の転位が深く関与していると考えられる。

一方、孔径 2.5nm のナノ多孔質ガラス中固体 ^4He においても、バルク固体と全く同様の「超流動」的挙動を示すことを見出した。これは転位が関与しない現象と結論され、超流動挙動発現の機構に重要な知見を与える。

(5) 2次元固体 ^4He の超流動的挙動

新しいスーパークリーンボース系の創成を目指して、グラファイト表面に吸着した固体 ^4He 薄膜のねじれ振子実験を行い、2原子層を少し下回る吸着量で、振動速度に依存して変化する周波数シフトを観測した。これは2次元固体でもバルク ^4He と同様の「超流動」的挙動が存在することを初めて示した極めて重要な成果であり、今後の展開が注目される。

(6) グラファイト表面における固体 ^4He の層状成長

グラファイト系多孔体(カーボンナノチューブ等)の細孔制御を目的として、グラフォイル(グラファイト層状多孔物質)に液体 ^4He を浸して加圧により固体 ^4He を成長させる実験を試み、バルク固化圧力(2.5MPa)近傍で 12 原子層程度まで固体が層状成長(エピタキシャル成長)することを見出した。この層状固体層は「低圧力固体 ^4He 」としてその超流動挙動の有無が興味深いだけでなく、カーボンナノチューブを用いたヘリウムナノサイエンスへの道を拓くセカであり今後が期待される。

(7) 原子吸着によるナノ多孔体の細孔径制御

ヘリウムナノ構造を制御する方法として、多孔体に他の気体分子を前吸着させることで孔径を減少させるというアイデアを得た。孔径 5nm の多孔質ガラスにクリプトン原子を吸着させることで、 ^4He に対する細孔径を 1nm 程度減少させ、超流動転移

温度を 0.05K 程度低下させることに成功した。

(8) ナノ多孔体に閉じこめた水素の固体液体転移の観測と量子効果探索

新しいスーパークリーン系の創成の一環として、水素(H_2)に着目し、ナノ多孔質ガラスに閉じ込めた液体水素の過冷却と量子効果について調べた。圧力と熱伝導の測定から、試料の一部が 7K 近くまで固化しないことが明らかになり、孔径制御により超流動等の量子効果を観測できるかもしれない。

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 29 件)

1. "Ultrasound Measurements of ^4He Confined in a Nano-porous Glass" Toshiaki Kobayashi, Junko Taniguchi, Ayanori Saito, Satoru Fukazawa, Masaru Suzuki, Keiya Shirahama, J. Phys. Soc. Jpn. Vol.79 No.8 掲載決定、査読あり
2. "Simultaneous Measurements of an Ultrasound and a Torsional Oscillator for Pressurized ^4He in a Nanoporous Glass", T. Kobayashi, A. Saito, J. Taniguchi, M. Suzuki, K. Shirahama, Journal of Low Temperature Physics, **158**, 250-255 (2010). 査読あり
3. "Torsional oscillator studies for possible supersolidity in two-dimensional ^4He solid", Yoshiyuki Shibayama, Hiroshi Fukuyama, Keiya Shirahama, J. Phys.: Conf. Ser. **150**, 032096 (4pp) (2009). 査読あり
4. "A current to voltage converter for cryogenics using a CMOS operational amplifier", Kenichi Hayashi, Kohta Saitoh, Yoshiyuki Shibayama, Keiya Shirahama, J. Phys.: Conf. Ser. **150**, 012016 (4pp) (2009). 査読あり
5. "Competition between the Superfluidity and the Slippage of ^4He Films Adsorbed on Porous Gold", K. Ideura, H. Kobayashi, N. Hosomi, J. Taniguchi, and M. Suzuki, Journal of Physics: Conference Series, **150**, 032032, 1-4 (2009). 査読あり
6. "Size Dependence of Superfluidity for ^4He Confined in FSM16", J. Taniguchi, R. Fujii, and M. Suzuki, Journal of Physics: Conference Series, **150**, 032108, 1-4 (2009). 査読あり
7. "Dynamical sticking of a solid ^4He with superfluid overlayer", N. Hosomi, J. Taniguchi, M. Suzuki, and T. Minoguchi, Physical

- Review B **79**, 172503-1-4 (2009). 査読あり
8. "Effect of ^3He on Superfluid ^4He Films Adsorbed on Grafoil", N. Hosomi, J. Taniguchi, M. Suzuki, and T. Minoguchi, Journal of Physics: Conference Series, **150**, 032031, 1-4 (2009). 査読あり
 9. "Sliding Friction of Kr Films Adsorbed on Single-Crystalline Graphite Substrate", H. Kobayashi, J. Taniguchi, M. Suzuki, K. Miura, and I. Arakawa, Journal of Physics: Conference Series, **150**, 032045, 1-4 (2009). 査読あり
 10. “固体ヘリウムの「超流動」をめぐる”，白濱圭也，日本物理学会誌，**64**，42-46 (2009). 査読なし
 11. “Localized Bose-Einstein Condensation of ^4He Confined in Nanoporous Media”，Keiya Shirahama，Keiichi Yamamoto，Yoshiyuki Shibayama，J. Phys. Soc. Jpn. **77**，111011 (8 pages) (2008). 査読あり
 12. "Torsional Oscillator Measurements of Liquid ^4He Confined in 2.2-nm Channels of FSM", J. Taniguchi and M. Suzuki, Journal of Low Temperature Physics **150**, 347-352 (2008). 査読あり
 13. "Thermodynamic Evidence for Nanoscale Bose-Einstein Condensation in ^4He Confined in Nanoporous Media", Keiichi Yamamoto, Yoshiyuki Shibayama, *Keiya Shirahama, Physical Review Letters **100**, 195301 (2008). 査読あり
 14. "Superfluidity of ^4He Confined in Nano-Porous Media", *K. Shirahama, K. Yamamoto, and Y. Shibayama, Low Temperature Physics (Fizika Nizkikh Temperatur), (Special Issue: *Helium 100 years*) **34**, 350-356 (2008). 査読あり
 15. "Liquid - Solid Transition and Phase Diagram of ^4He Confined in a Nanoporous Glass", Keiichi Yamamoto, Yoshiyuki Shibayama, Keiya Shirahama, Journal of the Physical Society of Japan **77**, 013601-1-4 (2008). 査読あり
 16. "Heat Capacity of Liquid ^4He Confined in a Nanoporous Glass", K. Yamamoto, Y. Shibayama, and *K. Shirahama, Journal of Low Temperature Physics **150**, 353-357 (2008). 査読あり
 17. "Comparison between torsional oscillator and ultrasonic measurements of liquid ^4He confined in nano-porous media", J. Taniguchi, H. Ichida, Y. Aoki, S. Fukazawa, M. Hieda, and M. Suzuki, Journal of Low Temperature Physics **148**, 791-795 (2007). 査読あり
 18. "Superfluidity of ^4He in a Porous Glass and Control of the Pore Size", Yoshiyuki Shibayama and Keiya Shirahama, Journal of Low Temperature Physics **148**, 803-807 (2007). 査読あり
 19. "Superfluidity of ^4He Adsorbed on Nanoporous Activated Carbon Fibers", Yoshiyuki Shibayama and Keiya Shirahama, Journal of Low Temperature Physics **148**, 809-813 (2007). 査読あり
 20. " ^4He in Nano - Porous Media: Superfluidity and Quantum Phase Transition", Keiya Shirahama, Journal of Low Temperature Physics (Invited Paper), **146**, 485-497 (2007). 査読あり
 21. "Simultaneous Measurements of an Ultrasound and a Torsional Oscillator for ^4He in a Nanoporous Glass", Toshiaki Kobayashi, Satoru Fukazawa, Junko Taniguchi, Masaru Suzuki, and Keiya Shirahama, Journal of Low Temperature Physics **148**, 797-801 (2007). 査読あり
 22. "Sliding friction of helium films in the metastable state and its relaxation", N. Hosomi, A. Tanabe, M. Suzuki, M. Hieda, Physical Review B **75**, 064513-1-5 (2007). 査読あり
 23. "Observation of Non-Classical Rotational Inertia in Bulk Solid ^4He ", Motoshi Kondo, Shun-ichi Takada, Yoshiyuki Shibayama, and Keiya Shirahama, Journal of Low Temperature Physics **148**, 695-699 (2007). 査読あり
 24. "Search for superfluidity of solid ^4He in a porous Vycor glass by means of the ultrasound technique", T. Kobayashi, S. Fukazawa, J. Taniguchi, M. Suzuki and K. Shirahama, Proceedings of the 24th International Conference on Journal of Low Temperature Physics (LT24), AIP Conference Proceedings Series, **850**, 333-334 (2006). 査読あり
 25. "Ultrasonic study for superfluidity of ^4He filled in a nano - porous glass", T. Kobayashi, S. Fukazawa, J. Taniguchi, M. Suzuki and K. Shirahama, Proceedings of the 24th International Conference on Journal of Low Temperature Physics (LT24), AIP Conference Proceedings Series, **850**, 277-278 (2006). 査読あり
 26. "Quantum phase transition of ^4He confined in a nano - porous material", Keiya Shirahama, Proceedings of the 24th International Conference on Journal of Low Temperature Physics (LT24), AIP Conference Proceedings Series, **850**, 273-278 (2006). 査読あり

読あり

27. "Suppression of Freezing and Emergence of a Novel Ordered State in ^4He Confined in a Nano - porous Material", K. Yamamoto, Y. Shibayama and K. Shirahama, Proceedings of the 24th International Conference on Journal of Low Temperature Physics (LT24), AIP Conference Proceedings Series, **850**, 349-350 (2006). 査読あり

28. "Quantum Phase Transition of ^4He Confined in Nano - Porous Media", Keiya Shirahama, Kei-ichi Yamamoto and Yoshiyuki Shibayama, Proceedings of the International Conference on Topology in Ordered Phases (TOP2005), World Scientific Publishing Co., 227-234 (2006). 査読あり

29. “ナノ多孔体に閉じこめたヘリウム 4 の量子相転移”, 白濱圭也, 山本恵一, 柴山義行, 固体物理 **41**, 43-51 (2006). 査読なし

〔学会発表〕(計 130 件) 以下主要な招待講演のみ抜粋

1. “ ^4He in Nanoporous Media: Quantum Phase Transition, Localized BEC, and Possible Supersolidity”, Keiya Shirahama, International Symposium on Quantum Fluids and Solids - 2009 (QFS2009), Northwestern University (Illinois, USA), 2009 年 8 月 3 日

2. “ナノ多孔体に閉じこめた ^4He の量子相転移と局在 BEC 状態”, 白濱圭也, 日本物理学会 2008 年秋季大会, 岩手大学, 2008 年 9 月 28 日

3. “Search for supersolid behaviors in 2-D Solid He-4 and He-4 in nanoporous media”, Keiya Shirahama, Workshop "Supersolid 2008", Abdus-Salam International Center for Theoretical Physics, Italy, 2008 年 8 月 19 日

4. “Effect of Sample History on Supersolid Response of ^4He ”, Keiya Shirahama, International Symposium on Quantum Fluids and Solids (QFS2007), Kazan(Russia), 2007 年 8 月 2 日

5. “固体ヘリウムの「超流動」-研究の現状と展望-”, 白濱圭也, 日本物理学会 2007 年春季大会, 鹿児島大学, 2007 年 3 月 27 日

6. “Observation of Non-Classical Rotational Inertia in Solid ^4He ”, Keiya Shirahama, Workshop on Supersolid State of Matter, Aspen (USA), 2006 年 5 月 29 日

7. “Observation of Non-Classical Rotational Inertia in Solid ^4He Confined in a Cylindrical Cavity”, Keiya Shirahama, Workshop on Supersolid State of Matter, Santa Barbara (USA), 2006 年 2 月 7 日

8. “Quantum phase transition of ^4He

confined in nanoporous media”, Keiya Shirahama, 24th International Conference on Low Temperature Physics (LT24), Orlando (USA), 2005 年 8 月 13 日

〔その他〕

ホームページ等

1. 特定領域研究「スーパークリーン物質で実現する新しい量子相の物理」ウェブサイト: <http://www.superclean-materials.org/>
2. 慶應義塾大学理工学部物理学科白濱研究室ウェブサイト:

<http://www.phys.keio.ac.jp/guidance/lab/s/sirahama/sirahama-lab-jp.html>

3. 電気通信大学鈴木勝研究室ウェブサイト: <http://ns.phys.uec.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

白濱 圭也 (SHIRAHAMA KEIYA)

慶應義塾大学・理工学部・教授

研究者番号: 70251486

(2) 研究分担者

鈴木 勝 (SUZUKI MASARU)

電気通信大学・電気通信学部・教授

研究者番号: 20196869

(3) 連携研究者

柴山 義行 (SHIBAYAMA YOSHIYUKI)

慶應義塾大学・理工学部・講師

研究者番号: 20327688