

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 6 年 6 月 7 日現在

機関番号：32612

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2020～2022

課題番号：20H00132

研究課題名(和文)量子相転移描像に基づく2次元ヘリウムの新奇量子現象開拓

研究課題名(英文) Novel Quantum Phenomena in 2D Helium with Aspects of Quantum Phase Transition

研究代表者

白濱 圭也 (Shirahama, Keiya)

慶應義塾大学・理工学部(矢上)・教授

研究者番号：70251486

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 35,200,000円

研究成果の概要(和文)：固体表面上ヘリウム(He)薄膜は、2次元強相関量子多体系として多様な新奇物理現象を示す研究対象となる。研究代表者らはこの2次元Heの性質が「励起にギャップをもつ局在相」と「ギャップが消失した流体相」の間の「量子相転移」という普遍的描像で統一的に理解できることを明らかにした。この描像を活用して新奇量子現象の開拓と解明に挑戦する。(1)フォノン照射による非平衡超流動、(2)純2次元³He超流動の探索、(3)超流動固体検証の3課題に沿って実験を進め、(1)(2)は研究途上であるが(3)では薄膜が誘電率に異常な挙動を示すことを明らかにし、量子相転移の理解と外場による薄膜の制御可能性に新しい道を拓いた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究の学術的背景は、近年の物性物理学の方向性と代表者が進めてきたヘリウム研究の整合性に基いている。近年、トポロジに基づく物理学が爆発的に進展しており、これまで一電子描像に留まってきたトポロジカル物質研究が、固体中電子の強相関性を取り込んでさらに発展する可能性がある。また熱平衡下では実現困難な新しい状態を非平衡下で実現する試みも、高温超伝導が観測されるなど新しい段階に入ってきた。2次元ヘリウムはこれらの概念を全て含み、トポロジカル超流動、量子液晶、外場非平衡などの新現象・新概念を示す研究対象となる。本研究は、次世代物性物理の発展に本質的寄与をなすと確信する。

研究成果の概要(英文)：Thin He films on solid surfaces are 2D strongly correlated systems which show a variety of novel physical phenomena. We have revealed that the properties of the He films can be understood by a physical picture, Quantum Phase Transition between a localised solid with a gap in the excitation and a (super)fluid phase with a vanishing gap. This picture is utilised to explore and elucidate novel quantum phenomena. Experiments have been carried out in searches for (1) non-equilibrium superfluidity by phonon irradiation, (2) purely 2D ³He superfluids, and (3) possible supersolid states. While (1) and (2) are still under study, in (3) we have found that He films show anomalous dielectric behaviour. It will opens a new avenue to understanding quantum phase transitions and controlling nonequilibrium properties by an external field.

研究分野：低温物理学

キーワード：物性物理 低温物理 量子流体固体 超流動 量子相転移 ヘリウム 非平衡

1. 研究開始当初の背景

固体表面に形成される吸着ヘリウム薄膜は「2次元強相関量子多体系」として、トポロジカル超流動、量子液晶、非平衡現象などの新奇な物理現象を示す研究対象となる。ヘリウムには⁴Heと³Heというボースおよびフェルミ同位体が存在し、それらがつくる2次元系は興味深い共通点と相違点を持つことが明らかにされてきた。ボース粒子系の⁴He単原子層薄膜が示す超流動転移はBKT型の典型例であることが知られている。一方³Heは核スピン1/2を有し、その単原子層薄膜は2次元面内の環状交換が支配的な磁気秩序を超低温で示す。これらの現象は既によく研究されその物理的機構も理解されているが、近年さらに興味深い性質の創発的発現が期待されている。その例がグラファイト上⁴Heにおける量子液晶状態(超流動と固体の共存状態)と、2次元³Heが示しうるトポロジカル超流動である。

研究代表者のグループでは、2次元ヘリウムの性質が「励起にエネルギーギャップをもつ局在固体状態」と「ギャップが消失した超流動状態」の間の「量子相転移」という見方量子相転移描像で統一的に理解で

きることを、局在相の弾性の測定により実験的に明らかにしてきた(図1)。これは、基板の種類や粒子統計性によらない普遍的描像であると期待される。また、局在状態のヘリウム原子を外場により拡がった状態に励起することで、非平衡の超流動状態が実現できるという着想を得た。

2. 研究の目的

本研究では、この量子相転移描像が多様な量子凝縮相を観測するための指針(guiding principle)となることを立証し、これを活用して、2次元ヘリウムに期待される新奇な量子現象の開拓とその解明に挑戦する。具体的には、以下の3つの新奇な量子凝縮相の解明に取り組む。(1)フォノン照射による非平衡超流動状態の実現、(2)純2次元トポロジカル超流動ヘリウム3の探索、(3)ヘリウム4薄膜における固体と超流動の共存の検証。

3. 研究の方法

本研究は複数の研究課題からなり、それぞれを独立に進めた。

(1) フォノン照射による非平衡超流動状態の探索

図2に研究のアイデアを示す。局在相が励起にエネルギーギャップを持つ固体であることから、外部より薄膜にギャップを超えるエネルギーを与えると吸着分子が空間的に拡がった励起状態に入り、非平衡ながら超流動を示すことが期待される。この非平衡超流動はヘリウム薄膜に限らず、水素等の他の原子分子薄膜で超流動を実現する有力な手法になり得る。これを実現するためには、固体基板に数ケルビンのエネルギーを持つ高周波フォノンパルスを与えればよい。本研究では複数のフォノン発生方法を実験的に試みてきた。まず超伝導トンネル接合により超伝導ギャップ程度のフォノンを生成するためのトンネル接合素子(ジョセフソン素子)の開発を試みた。テストのしやすさを考えてNb/Al/AlO_x/Nb接合を、日本女子大学石黒研究室の協力を得て作成した。更に、より簡便な手法として金属薄膜にパルス電流を流してフォノン生成を行い、ポロメータで検出する手法の開発も行った。

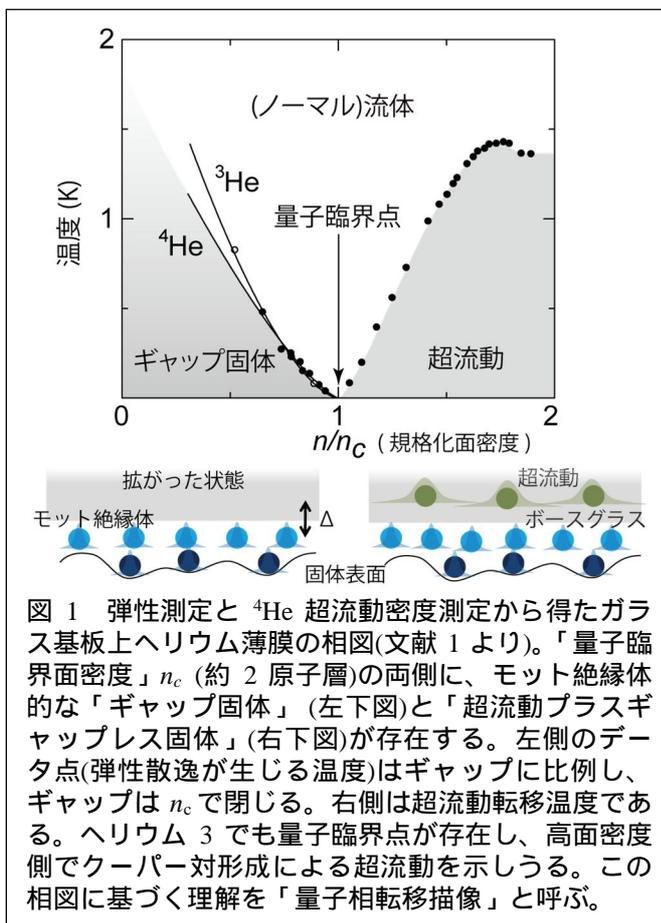


図1 弾性測定と⁴He超流動密度測定から得たガラス基板上ヘリウム薄膜の相図(文献1より)。「量子臨界面密度」 n_c (約2原子層)の両側に、モット絶縁体的な「ギャップ固体」(左下図)と「超流動プラスギャップレス固体」(右下図)が存在する。左側のデータ点(弾性散逸が生じる温度)はギャップに比例し、ギャップは n_c で閉じる。右側は超流動転移温度である。ヘリウム3でも量子臨界面が存在し、高密度側でクーパ対形成による超流動を示しうる。この相図に基づく理解を「量子相転移描像」と呼ぶ。

これらの方法では局在相のエネルギーギャップ程度(数ケルビン、周波数 10GHz オーダー)のフォノン生成が可能だが、より小さなエネルギーで確実にフォノン生成が可能な超音波トランスデューサによる実験も進めてきた。これは多孔質ガラスに市販の水晶トランスデューサを貼り付けて行い、約 200MHz(10mK オーダー)のフォノン生成が可能である。エネルギーは小さいがヘリウム薄膜に対して超流動を増強させる効果(超流動密度の増加、転移温度の上昇)が期待できる。一対の水晶トランスデューサを多孔質ガラス(シリカモノリス)の両端に貼り付け、ねじれ振動子ボブに封入することで、超音波を薄膜に照射しつつ超流動特性を測定可能な装置を製作した。

(2) 純 2 次元ヘリウム 3 の超流動探索
 ガラス基板上 ^3He 薄膜でも弾性異常すなわち局在固体 - フェルミ流体間の量子相転移が観測されたことから、臨界吸着量以上かつ超低温下では、 ^3He が単原子層程度の薄膜で純 2 次元超流動を示すことが期待される。純 2 次元と擬 2 次元超流動状態の違いを図 3 に模式的に示す。純 2 次元の ^3He 超流動が観測されたことはない。

実際の実験における探索では、ガラスのような乱れた基板上でクーパー対が破壊される可能性があるため、原子スケールで平坦な表面が数 μm 以上のサイズで得られる基板材料が求められる。この条件を満たす基板として、本研究では高配向性グラファイト(HOPG)と六方晶窒化ホウ素(hBN)を採用する。一対の HOPG 表面を対向させて平行平板コンデンサを作成し、その間に電場を発生させて誘電体として ^3He 薄膜を引き込み、流動特性を調べることを企図した。hBN 基板については、後述する粉末試料を用いて ^4He 薄膜の量子相転移を観測する予備実験を行った。また ^3He 超流動の観測には 1mK 以下の超低温が必要なため、PrNi₅ を作業物質とするコンパクトな核断熱消磁装置の準備を行った。

(3) ヘリウム 4 薄膜における固体と超流動の共存可能性の研究

グラファイト上 ^4He 薄膜では、グラファイト表面のポテンシャルの周期性の影響で吸着第 2 層に超流動と密度波(整合固体)の共存状態を示唆する実験結果が複数存在する。本研究ではこの問題に関連して、ヘリウム薄膜の超流動性と弾性、更に誘電性に関する実験を行った。

ヘリウム薄膜における誘電測定

量子相転移描像は、局在相の弾性異常の発見とその解析により確立してきた。弾性異常がヘリウムだけでなく水素やネオン薄膜でも観測され、かつその温度依存性がかつて水素薄膜で観測された誘電率の異常な挙動に似ていたことから、多孔質ガラス基板上 H_2 および ^4He 薄膜の交流誘電率測定を広範な面密度領域で行った。結果は次章にて述べる。

六方晶窒化ホウ素上ヘリウム薄膜

超流動・固体共存状態はグラファイトがつくる周期ポテンシャルとヘリウム原子間相互作用の効果で生じると考えられる。これを詳細に調べるには、ポテンシャルの深さが異なる物質を基板に用いることが重要であると考え、六方晶窒化ホウ素(hBN)を基板に使用して実験を行った。hBN はグラファイトとほぼ同じ格子定数でポテンシャル深さが約 100 ケルビン浅いため、より少ない面密度で超流動状態の発現が期待される[2]。

市販の hBN 粉末(UHP-S2)を製造元(昭和電工、現 Resonac)より提供いただき、これをプレスした円盤試料の上下に平行平板電極を付け、全体をねじれ振動子ボブに封じることで、超流動特性と誘電特性の同時測定を 0.3K 以上で行った。

4. 研究成果

研究目的に掲げた 3 つの課題を同時に開始したが、研究の進捗は課題ごとに大きく異なった。適宜計画を変更して、これまでに下記の研究成果を得た。

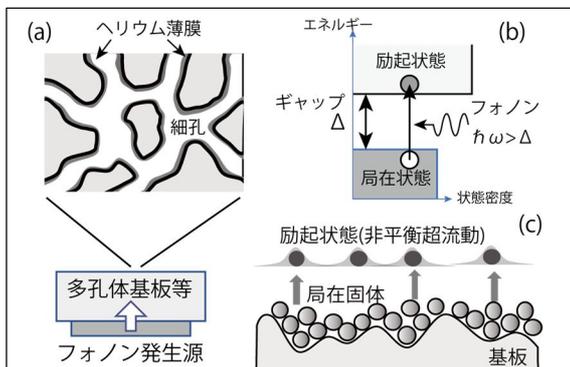


図 2 非平衡超流動の実現方法。(a)吸着基板に接したフォノン発生源より、ヘリウム薄膜にフォノンを照射する。(b)(c)フォノンエネルギー $\hbar\omega$ がエネルギーギャップ Δ を越えれば、局在状態から広がった励起状態にヘリウムが励起されて超流動状態に加わる。

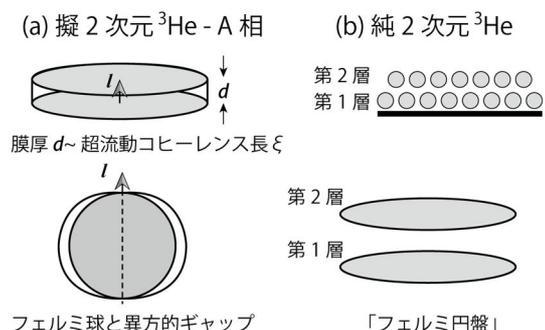


図 3 擬 2 次元と純 2 次元 ^3He の違い。(a)擬 2 次元(A 相を例に取る)はコヒーレンス長の数倍(約 100nm)の膜厚で、フェルミ面上にギャップを持つ。(b)純 2 次元 ^3He は、層ごとにフェルミ円盤を形成し、ギャップは円盤の縁にある。

予備実験を行った。また ^3He 超流動の観測には 1mK 以下の超低温が必要なため、PrNi₅ を作業物質とするコンパクトな核断熱消磁装置の準備を行った。

(1) フォノン照射による非平衡超流動状態の探索

高周波フォノンパルスを生成する方法として、超伝導接合、金属薄膜によるヒートパルス法、超音波法の3種類を試みてきている。

超伝導トンネル接合: Siウェハ-上に多数のNb/Al/AIO_x/Nb接合を作成して、ジョセフソン接合および準粒子トンネル接合としての動作特性を測定し、良好な特性を示す素子を選んだ。それらをSiブロックに接着し、電圧パルスを印加してフォノン伝搬特性の測定を行った。しかし、フォノンの生成伝搬は確認できなかった。この理由としては接合のIV特性が理想的挙動には至っていないこと、Siウェハ-とブロックの貼り合わせ箇所フォノンが伝搬していない可能性がある。後者は多孔性物質にウェハ-を貼り付ける必要がある本実験には重大な問題となりうるため、方針を変更して下記ヒートパルス法に着手することにした。

ヒートパルス法: 確実にフォノン生成と検出が可能な方法として、金(Au)薄膜を蒸着してパルス電流を流す方法と、超伝導薄膜の抵抗変化を利用するボロメータを製作した。しかし冷凍機のマシンタイムの制限により低温での測定ができず、フォノン生成伝搬の観測には至っていない。現在継続して試料作成と冷凍機の準備を行っており、この方法で分子薄膜へのフォノン照射を行う予定である。

超音波法: 厚み 50 μm の水晶トランスデューサ(基本周波数 20MHz)を用いて、超音波によるフォノン生成検出も準備した。多孔体基板としてシリカモノリス((株)DPS(京都)製)を特注し、円柱状試料の両端にトランスデューサを貼り付け、ねじれ振動子ポブに封入した装置を作製した。これについても冷凍機のマシンタイムの事情でまだ測定できておらず、今後迅速に実験を進める予定である。

以上の3つの実験は、本来希釈冷凍機を使用して1K以下の温度で実施する計画であったが、液体ヘリウム寒剤の入手難により手がけている無冷媒希釈冷凍機の準備(既存希釈冷凍機の無冷媒化)が種々の事情により大幅に遅れたため、十分なマシンタイムを取ることができなかった。希釈冷凍機を用いると、超伝導薄膜と接合に臨界温度が低い材質を使用できるため、フォノン生成検出の可能性が大きく高まる。現在複数の無冷媒希釈冷凍機の準備を並行して進めており、今後も引き続き非平衡状態の実現に向けて努力を続ける。

(2) 純2次元ヘリウム3の超流動探索

まず³He超流動の観測に向け、PrNi₅を作業物質とするコンパクトな核断熱消磁装置(目標最低温度 0.5mK)の準備を行った。この装置も無冷媒希釈冷凍機の準備遅延により未試験の状態であり、今後迅速に準備を完了させる予定である。

HOPGを電極とする平行平板コンデンサを作成し、その誘電特性を室温のみではあるが調べた。市販のHOPGブロックでは十分に平坦な表面を得ることが難しいと思われるため、市販の面積積グラフェンなどを利用することを検討している。また、hBNも平坦な表面を持つ吸着基板として有望であり、後述するように⁴He薄膜においては素性の良い2次元BKT超流動転移を観測することに成功した。今後はhBNについて粉末試料とバルク単結晶試料の両方を検討し、³He薄膜の量子相転移の観測を試みていく。

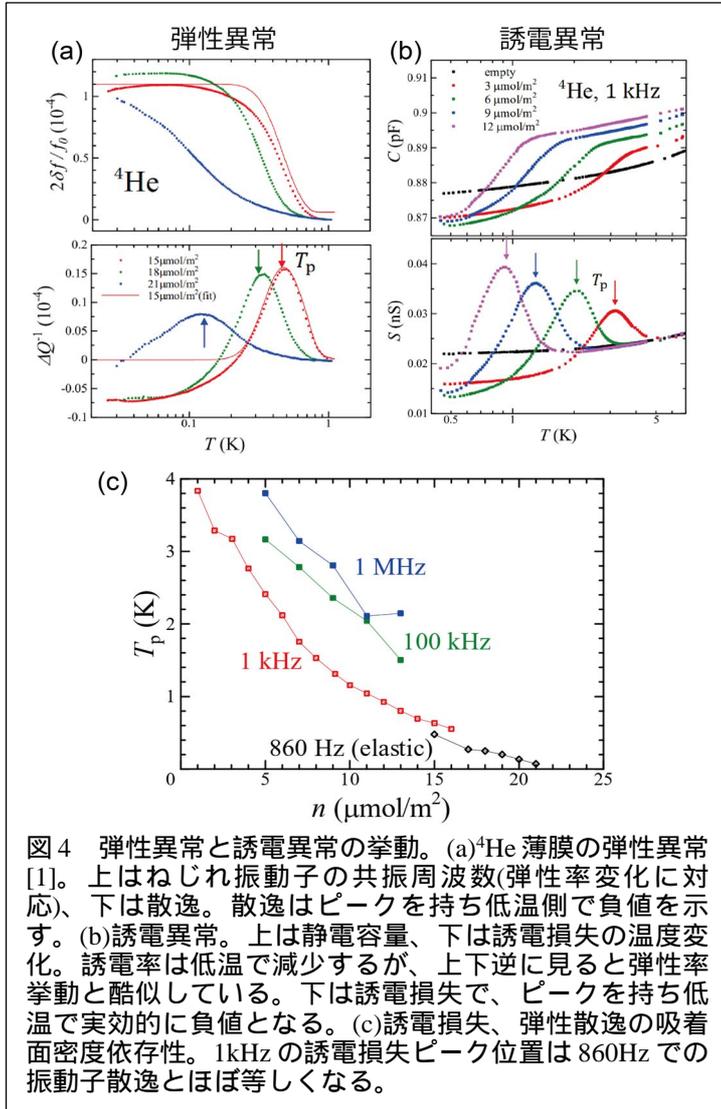


図4 弾性異常と誘電異常の挙動。(a)⁴He薄膜の弾性異常[1]。上はねじれ振動子の共振周波数(弾性率変化に対応)、下は散逸。散逸はピークを持ち低温側で負値を示す。(b)誘電異常。上は静電容量、下は誘電損失の温度変化。誘電率は低温で減少するが、上下逆にみると弾性率挙動と酷似している。下は誘電損失で、ピークを持ち低温で実効的に負値となる。(c)誘電損失、弾性散逸の吸着面密度依存性。1kHzの誘電損失ピーク位置は860Hzでの振動子散逸とほぼ等しくなる。

(3) ヘリウム 4 薄膜における固体と超流動の共存可能性の研究

ヘリウム薄膜における誘電測定

多孔質ガラス円盤試料の上下に平板電極を取り付けて、 H_2 と 4He 薄膜が存在するときの誘電率と誘電損失を、広範な面密度領域で精密に測定した。その結果、 H_2 と 4He の両方において、弾性異常が生じる温度・面密度領域で振る舞いが酷似した誘電率と損失の異常な挙動を観測した。 4He 薄膜での弾性異常と誘電異常の比較を図 4 に示す。誘電異常が生じる温度と面密度が弾性異常のそれと極めて近いことから、誘電異常は弾性異常と同じ機構で生じると考えられる。従って、弾性測定よりも遥かに簡便に実施可能な誘電率測定を量子相転移の研究手法に利用できる可能性が開かれた。実際に誘電特性の温度依存性を、エネルギーギャップに分布を仮定して定量的に解析(フィッティング)したところ、弾性異常の解析結果とほぼ同様の物理量がフィッティングパラメータとして得られた。

また、 H_2 と 4He 薄膜の両方低吸着量(およそ単原子層程度)の領域では、誘電率と損失がガラス基板のそれを下回る振る舞い – 負の薄膜誘電率と誘電損失 – が観測された。「負の損失」については弾性異常における振動子のエネルギー散逸の低温側の挙動でも観測されていた。これらは不合理な挙動ではなく、原子分子の物理吸着によりガラス基板表面付近の電気双極子や弾性双極子の動きが阻害されることに起因すると考えられる。ガラス基板の弾性と誘電性は極低温で「トンネル二準位系」に支配されることが知られており、誘電および弾性異常は二準位系をもたず SiO_2 骨格の原子変位が局在化の影響を強く受けることの現れである。この機構を二準位系理論の枠内で解明することが今後の課題である。さらに、吸着基板の表面近傍原子を外場で励起することで、吸着原子の物理状態を変化させ、非平衡相転移のような現象を誘起できる可能性があり、これについても検討を進めていく。

六方晶窒化ホウ素上ヘリウム薄膜

超流動・固体共存状態はグラファイトがつくる周期ポテンシャルとヘリウム原子間相互作用の効果で生じると考えられる。これを詳細に調べるには、ポテンシャルの深さが異なる物質を基板に用いることが重要であると考え、六方晶窒化ホウ素(hBN)を基板に使用して実験を行った。hBN はグラファイトとほぼ同じ格子定数でポテンシャル深さが約 100 ケルビン浅いため、より少ない吸着量で超流動状態の発現が期待される。

市販の hBN 粉末(UHP-S2)を製造元(昭和電工、現 Resonac)より提供いただき、これをプレスした円盤試料の上下に平行平板電極を付け、全体をねじれ振動子ボブに封じることで、超流動特性と誘電特性の同時測定を 0.3K 以上で行った。その結果、約 1 原子層以下の面密度で誘電異常を、それ以上の面密度領域で 2 次元 BKT 型の超流動転移を観測した。約 1.0~1.2 原子層に臨界面密度が存在し、量子相転移が生じている可能性が高いが、使用した 3He 冷凍機の最低到達温度が 0.3K と高いため、量子臨界点の決定には至っていない。また、グラファイト上 4He 薄膜で観測されている超流動密度と転移温度への層構造(layering)の強い効果は、hBN では観測されていない。

以上の結果は、hBN 基板の吸着ポテンシャルがグラファイトに比べて弱いことを反映していると考えられるが、そのためグラファイトで見られる多様な構造や量子状態も、hBN 上 4He では存在できない可能性もある。今後、希釈冷凍機温度域に測定を拡張して、より低温での様相を明らかにしていく。

また、原子レベルで平坦でかつ弱い吸着ポテンシャルを有する基板は、研究課題(2)の純 2 次元 3He 薄膜の超流動実現には有利であり、今後は 3He 薄膜の性質も明らかにしていきたい。

参考文献

- [1] T. Makiuchi, M. Tagai, Y. Nago, D. Takahashi, and K. Shirahama, Phys. Rev. B **98**, 235104 (2018).
- [2] Saverio Moroni, Francesco Ancilotto, Pier Luigi Silvestrelli, and Luciano Reatto, Phys. Rev. B **103**, 174514 (2021).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計15件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 9件）

1. 発表者名 大串涼, 谷智行, 永合祐輔, 白濱圭也
2. 発表標題 六方晶窒化ホウ素表面上ヘリウム4薄膜の超流動
3. 学会等名 日本物理学会第79回年次大会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 Keiya Shirahama, Ryo Oogushi, Keisuke Kuwahara, Yusuke Nago, Tomoyuki Tani
2. 発表標題 Superfluidity of 4He films adsorbed on hexagonal boron nitride
3. 学会等名 International Conference on Quantum Fluids and Solids 2024 (国際学会)
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 Leo Maximov, Nico Huber, Andreas Bauer, Yusuke Nago, Keiya Shirahama, and Christian Pfleiderer
2. 発表標題 Development of a nuclear adiabatic demagnetization stage using PrNi5 as cooling medium
3. 学会等名 International Conference on Magnetism 2024 (国際学会)
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 小池郁也, 岡村公平, 永合祐輔, 白濱圭也
2. 発表標題 ヘリウム薄膜の誘電率異常の周波数依存性
3. 学会等名 日本物理学会第78回年次大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Keiya Shirahama
2. 発表標題 Dielectric and elastic anomalies in helium films
3. 学会等名 International Conference on Quantum Fluids and Solids 2023 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Keiya Shirahama
2. 発表標題 Elastic and dielectric anomalies in helium films
3. 学会等名 Workshop Supertransport 2023 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Keiya Shirahama
2. 発表標題 4D XY Quantum Criticality in 4He Confined in Nanoporous Media
3. 学会等名 29th International Conference on Low Temperature Physics (LT29) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Fumiya Koike, Mani Michikawa, Tomoyuki Tani, Yusuke Nago, Keiya Shirahama
2. 発表標題 The Dielectric Anomaly in 4He Films
3. 学会等名 29th International Conference on Low Temperature Physics (LT29) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Yusuke Nago, Fumiya Koike, Mani Michikawa, Tomoyuki Tani, Keiya Shirahama
2. 発表標題 The Dielectric Anomaly of Hydrogen Films
3. 学会等名 29th International Conference on Low Temperature Physics (LT29) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Toyoyuki Tani, Ryoma Wada, Kohei Kaiya, Yusuke Nago, Satoshi Murakawa, Keiya Shirahama
2. 発表標題 Observation of Phase Slippage in 4He Superflow through a Newly Developed Microslit
3. 学会等名 29th International Conference on Low Temperature Physics (LT29) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Leo Maximov, Nico Huber, Andreas Bauer, Keiya Shirahama, Christian Pfleiderer
2. 発表標題 Development of a miniaturized, modular, nuclear demagnetization stage
3. 学会等名 DPG Spring Meeting of the Condensed Matter Section (SKM) 2023 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 鈴木貴博, 巻内崇彦, 永合祐輔, 白濱圭也
2. 発表標題 弾性異常で見たグラファイト上4He薄膜の量子相転移
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 桑原啓佑, 鈴木貴博, 永合祐輔, 白濱圭也
2. 発表標題 六方晶窒化ホウ素表面上ヘリウム4薄膜の超流動と弾性
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 白濱圭也, 道川真丹, 伊藤愛菜, 谷智行, 永合祐輔
2. 発表標題 水素薄膜の低温における誘電率の異常挙動
3. 学会等名 日本物理学会2021年秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 小池郁也, 道川真丹, 永合祐輔, 白濱圭也
2. 発表標題 ヘリウム及び水素薄膜における誘電率の異常
3. 学会等名 日本物理学会第77回年次大会
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

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

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	永合 祐輔 (Nago Yusuke) (50623435)	慶應義塾大学・理工学部(矢上)・助教 (32612)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計1件

国際研究集会 International Conference on Ultra Low Temperature Physics (ULT2022)	開催年 2022年～2022年
---	--------------------

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関			
ドイツ	ミュンヘン工科大学			