

平成 30 年 5 月 21 日現在

機関番号：12608

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2014～2017

課題番号：26287074

研究課題名(和文)ヘリウム4結晶における濡れ性制御と量子トライボロジーの開拓

研究課題名(英文)Controlling wetting properties of 4He crystals and pioneering quantum tribology

研究代表者

野村 竜司 (Nomura, Ryuji)

東京工業大学・理学院・助教

研究者番号：00323783

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,900,000円

研究成果の概要(和文)：圧電素子で基板を左右へ非対称なずれ振動させることにより、動摩擦と静摩擦の差を利用して、超流動4He中に水平に配した基板上の4He結晶を水平方向に駆動することに初めて成功した。観測された4He結晶の運動は、通常物質の運動と大きく異なり、高速で超流動体から結晶成長する4He結晶の量子性が関わった新しいタイプの駆動様式によるものであった。また超流動液体中の4He結晶の濡れ性の制御が、基板の粗面化により可能であることを実証した。これにより、結晶においても、基板表面に液体が浸潤するCassie-Baxter状態がありえることが示された。

研究成果の概要(英文)：It was demonstrated that a 4He crystal can undergo motion on an oscillating plate as the result of employing an inchworm driving, a technique that is employed to impart motion, based on the difference between static and dynamic friction forces. However, the observed motion was quite different from the ordinary behavior of classical objects. The movement of these quantum crystals can be attributed to the anomalously quick crystal-superfluid transition, namely crystallization on one side and melting on the other, assisted by superflow induced during the oscillation. It was demonstrated that controlling the contact angle of a 4He crystal in superfluid is possible on a rough wall. From the comparison of the contact angles and SEM image of the rough wall, the Cassie-Baxter state was likely to be realized on it; the 4He crystal had a direct contact with the protruding parts of the rough surface but superfluid was entrapped between the crystal and the hollow parts of the wall.

研究分野：低温物理学

キーワード：量子固体 超流動 トライボロジー 摩擦 接触角 濡れ Cassie-Baxter state 結晶成長

1. 研究開始当初の背景

二つの物体が接触してずれ運動を行うときに生じる摩擦・磨耗・潤滑などを調べる学問領域がトライボロジーであり、長い研究の歴史がある。たとえば金属、岩石などの古典マクロ物質でアモントン・クーロンの法則（摩擦の3則）などが調べられてきたが、試料の不均一性などの影響で再現性に問題がある場合も多い。一方でグラファイト小片などのナノ物質での精密な摩擦研究では、超潤滑性の検証などが進んでおり、原子スケールでのトライボロジーは近年重要な課題になっている。究極の清浄表面を有する超流動液体中のマクロなサイズの4He量子結晶を用いた摩擦実験は両者をつなぐものとなり得る。アモントン・クーロンの法則（とその破れ）や超潤滑性などの、トライボロジーの基礎的問題に答え得る、新たな清浄表面物理の舞台として極低温4Heのマクロ結晶を取り上げる。

一方で、量子効果が巨視的スケールで表れる4Heにおいては、摩擦現象に対しても量子効果が発現すると期待できる。これまでにトンネル効果による量子核生成などの巨視的量子現象は観測されているが、これらがトライボロジーにどの様に影響するかは全く分っていない。例えば基板のピン止めポテンシャルに引っかかった4He結晶が、巨視的トンネル効果によってピン止めを外れて動き出す可能性がある。事実、我々は多孔体中での結晶化においては、乱れを巨視的トンネル効果で超える量子的結晶成長を見出している。また超流動液体から4He結晶は高速で成長する。その結晶成長係数は低温で増大し、金属の融液成長と比べると10桁も大きくなるということが知られている。この速い結晶成長も液体の超流動性の賜物であり、量子効果の発現と見なせる。速い結晶成長は、結晶が外的擾乱を受けて簡単に成長や融解の相転移をすることも意味しており、摩擦と非散逸流や高速相転移が結合することによる新たな動的振る舞いを見せると期待できる。

しかし、超流動状態の液体4He中で物体を動かすことは容易では無い。そもそも極低温実験で物体を動かすこと自体が簡単ではなく、超流動液体中では尚更である。これまでに4He結晶の方位や位置を自由に制御する方法は知られていない。我々は、ピエゾ素子を用いたいわゆる尺取虫駆動と、音響放射圧による駆動の、二つの方法を用いて4He結晶の駆動法を確立したいと考える。動摩擦と静止摩擦の差を利用したピエゾ素子による尺取虫駆動は、極低温でも走査型顕微鏡の粗動装置として広く用いられている。また音響放射圧を用いれば4He結晶表面を自由に成長や融解させることが出来ることを、過去に我々は見出している。

摩擦や潤滑で重要な働きをすると考えられる、基板の境界条件の制御も目的としている。超流動4Heはほとんど全ての物質の表面を完全に濡らすことは良く知られている。一

方、4He結晶は超流動液体中で部分的濡れを示し、ガラスや金属表面での接触角は約135度である。古典物質においては、基板表面に微細な凸凹を作製することにより、蓮の葉の表面に転がる水滴で見られるような超撥水性を示すことが知られている。同様な方法で超流動液体中の4He結晶の濡れ性を弱め、その接触角を180度（あるいは超流動体の濡れ性を強め、超流動液体側の接触角を0度）に近づけ、壁の境界条件を系統的に変化させてトライボロジーを調べたい。

2. 研究の目的

新たな清浄表面物理の舞台としての超流動液体中の4He量子結晶を用いた摩擦の研究を行い、熱揺らぎの小さい低温極限における量子的トライボロジーの開拓を行う。4Heの超流動液体や量子結晶においては、巨視的量子トンネル効果、非散逸流、超高速結晶成長など、その動的性質に巨視的量子効果が現れることが知られている。しかし、これらの量子効果が非平衡現象の典型としての摩擦にどのように影響を与えるかは未開拓であり、古典物質では実現しえない新現象が現れる素地となる。ピエゾ素子あるいは超音波素子による4He結晶の駆動法を確立したい。また基板の微細加工による4He結晶の濡れ性の制御実現、濡れ性の弱い基板上への超流動膜の浸潤による4He結晶の超潤滑の探索、および濡れ性に空間変調をかけて乱れを導入した基板上での4He結晶の摩擦力の測定も行いたい。

3. 研究の方法

ピエゾ素子にノコギリ波状の電圧をかけると、遅い電圧変化の位相では静止摩擦力により物体は基板と一緒に動き、速い電圧変化の位相ではすべることを利用するのが尺取虫駆動方法である。走査型顕微鏡などの粗動機構で馴染み深い。通常の装置構成では、ピエゾに固定された固定ステージと、そのステージに磁力などで張り付いた移動ステージからなる。移動ステージが静止摩擦で耐えられなくなると、すべり始めることとなる。4He実験での構成では、ピエゾ素子と一緒に動くステージを作成し、その上に作成した4He結晶を駆動する。ノコギリ波の振幅を上げていくと、どこかですべり始め、結晶が移動するはずである。ノコギリ波の1周期での移動はマイクロメートル程度であり検出できないが、多周期に亘り観測すれば移動が検出できる。

表面修飾した基板上での4He結晶と超流動液体の接触角の変化を測る。ガラス基板の表面加工には、最近入手が容易になっている超撥水処理用のセラミック微粒子とポリマーの混合物からなるコート材を用いる。この基板上に4He量子結晶を作製し、超流動液体との接触角を測定する。表面処理の条件を系統的に変化させて、結晶の濡れ性が弱くなる条件

を見出す。最終的に接触角が 180 度近くになる、Wenzel 状態から Cassie-Baxter 状態への変化を実現する。要求される表面の突起のスケールは、4He 結晶の毛管長 1 mm 以下であれば良いので、マイクロメートル程度の凸凹を作製することにより実現可能である。

これらの測定を、我々が保有する光学窓付き希釈冷凍機を用いて、極低温で直接に可視化して行う。

4. 研究成果

(1) 超流動4He中に水平に配した基板の上に4He結晶を置き、この結晶を水平方向に駆動することに初めて成功した。圧電素子により、基板を左右へ非対称なずれ振動させると、基板の上の4He結晶が水平に動いたのである。非対称振動による駆動は、いわゆる尺取虫駆動法の一つで、動摩擦と静摩擦の差を利用して物体を動かす方法として知られている。この方法が、粘性の無い超流動体中の4He結晶を駆動するのに有効であることを示すことができた。ただし、観測された4He結晶の運動は、通常物質の運動と大きく異なり、複雑な振る舞いを見せた。

4He結晶は、振動を開始した直後は変形をするのみで移動せず、この変形が完了した後に初めて大きく移動した。この移動距離は、振動振幅から期待されるよりも一桁大きかった。非対称振動のゆっくりと基板が変位する位相では、結晶表面近傍で誘起される超流動流により、結晶の片側で結晶が成長し、逆側で融解することにより、結晶が見かけ上、大きな距離を移動したように見えるという機構を提案した。高速で超流動体から結晶成長する、4He結晶の量子性が関わった新しいタイプの駆動様式を観測したと考えられる。この結果は日本物理学会が発行する英文誌Journal of the Physical Society of Japanの2017年7月号に掲載され、Editors' Choiceに選出された。超流動4He中で4He結晶の駆動が実現できたことは、4He結晶と基板の滑りや、二つの4He結晶間の究極の清浄表面における摩擦力測定への道を開く成果である。

物体間の摩擦や磨耗を調べるトライボロジーは、工学的にも重要であるが、これまでその研究対象としてきたのは量子効果が大きくは効かない通常物質が主であった。量子性が顕著に現れる4He結晶の摩擦研究が可能となれば、量子トライボロジーとも言える研究への展開が期待できる。

(2) 濡れ性の制御を実現するために、市販の撥水コート剤でガラス表面コートし、超流動液体中の4He単結晶の接触角を測定した。コートした面とコートしていない面の4He結晶の接触角の比較を行ったところ、測定した十数

個の結晶においてコートした面での接触角の増大が見られた。これにより、撥水コート剤の塗布という簡便な方法でも、壁表面のラフネスを増大させることにより、極低温における4He結晶の接触角の制御が可能であることが示された。ただし接触角の増大は最大でも20度程度であり、完全反濡れ状態は実現してはいない。

この接触角をCassie-Baxterの関係式を用いて評価してみると、結晶と壁が接触している凸の部分の割合は7割程度で、残りの3割の凹の部分では結晶と壁の間に超流動液体が浸潤していると考えられた。このような浸潤状態はCassie-Baxter状態として知られるものである。また撥水コートした表面を捜査電子顕微鏡で観察したところ、数ナノか数百ナノの空間スケールに亘って、凸凹と荒れた表面が実現していることが分かった。この顕微鏡画像から凸の部分の割合を評価したところ、Cassie-Baxterの関係式からの見積もりと妥当な一致を示した。これにより荒れた表面上における4He結晶のCassie-Baxter状態の存在を初めて示すことができた。これは、4Heのみならず、他の古典結晶を含めても、基板の凸凹で濡れ性が制御できることを示したはじめての結果であり、Phys. Rev. Eに論文として公表した。

(3) 4He結晶の塑性変形に関連して、結晶中の質量輸送の問題が絡んでいる現象を見出した。0.6 K以下の温度域で、バルク結晶に取り囲まれた多孔質中で、圧力一定化でも冷却により結晶化が進行することを見出した。バルク結晶の新たな塑性変形の機構であり、量子結晶に特有のトライボロジーに関連する可能性がある。近年、超固体性との関連で結晶中の質量輸送は注目されているが、そのような質量流が存在して初めて可能となる結晶化である。超固体性の新たな発現様式として、この結果をPhys. Rev. Bに論文として公表した。

(4) 音響放射圧で大変形を駆動した後の、4He結晶の緩和時間が、成長過程と融解過程で大きく異なっていることを見出した。この緩和時間の差異を、緩和中に誘起された高速の超流動流により、結晶相が安定化するという機構で説明した。この新たな緩和課程の結果をNew J. Phys.に論文として公表した。

(5) 微小重力中での4He結晶の平衡形の観測に成功した。壁のピン止めの影響を受けて準安定状態にある4He結晶に、音響放射圧パルス当てて大変形を駆動すると、準安定状態から抜け出し、最低エネルギー形状である平衡形へと緩和した。量子結晶では量子揺らぎが大きいために、平衡形のファセットの大きさ

が非常に小さかった。この量子結晶の平衡形の結果をScience Advancesに論文として公表した。

(6) 音響放射圧パルスで核生成した 4He 結晶が、超流動液体中を落下する様子を観測した。結晶は下からの一様な超流動流に晒されて大きく変形した後に、容器の底へと衝突した。落下中の結晶形では、下側で平らなファセット面が広がり、上側でラフな面が広がった。これは下からの超流動流を受けて、下側で結晶成長し、上側で融解するためであり、高速の成長・融解が可能な量子結晶に特有の振る舞いである。この結果をNew J. Phys.に論文として公表したところ、IOPselectに選出された。

<引用文献>

- H. Matsuda, A. Ochi, R. Isozaki, R. Masumoto, R. Nomura, and Y. Okuda, Phys. Rev. E **87**, 030401(R) (2013).
Y. Okuda and R. Nomura, J. Phys. Soc. Jpn. **77**, 111009 (2008).
K. Kono: JPSJ News Comments **14**, 07 (2017).

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計 11件)

Inchworm Driving of 4He Crystals in Superfluid, T. Yoshida, A. Tachiki, R. Nomura, and Y. Okuda, J. Phys. Soc. Jpn. **86**, 074603-1-5 (2017). Paper of Editors' Choice.
<https://doi.org/10.7566/JPSJ.86.074603>

Asymmetry in Melting and Growth Relaxations of 4He Crystals in Superfluid after Manipulation by Acoustic Radiation Pressure, R. Nomura, H. Abe, and Y. Okuda, New J. Phys. **19**, 023049-1-13 (2017).
<https://doi.org/10.1088/1367-2630/aa5b54>

4He Crystals in Reduced Gravity Obtained by the Parabolic Flights of a Jet Plane, T. Takahashi, R. Nomura, and Y. Okuda, J. Low Temp. Phys. **185**, 295-304 (2016). Invited article.
DOI 10.1007/s10909-016-1592-y

Crystallization of 4He in Aerogel via Mass Flow from Surrounding Solid 4He , H. Matsuda, A. Ochi, R. Isozaki, S. Minami, R. Nomura, J. Pollanen, W. P. Halperin, and Y. Okuda, Phys. Rev. B **94**, 024509-1-7 (2016).

DOI: 10.1103/PhysRevB.94.024509

Control of the wetting properties of 4He crystals in superfluid, T. Takahashi, H. Minezaki, A. Suzuki, K. Obara, K. Itaka, R. Nomura, and Y. Okuda, Phys. Rev. E **93**, 052806-1-6 (2016).
DOI:10.1103/PhysRevE.93.052806

多孔体中における量子結晶成長と自己組織化臨界性、野村竜司、ホソカワ粉体工学振興財団年報、**23**, 142-147 (2016).
<https://doi.org/10.14356/hptf.13123>

Equilibrium Shape of 4He Crystal under Zero Gravity below 200 mK, T. Takahashi, H. Ohuchi, R. Nomura, and Y. Okuda, Science Advances, **1**, e1500825-1-5 (2015).
DOI: 10.1126/sciadv.1500825

Transverse Acoustic Impedance of Superfluid 3He B Phase in Weak Magnetic Fields, K. Akiyama, M. Wasai, M. Mashino, T. Nakao, S. Murakawa, R. Nomura, and Y. Okuda, J. Phys. Soc. Jpn. **84**, 065001-1-2 (2015).
<http://dx.doi.org/10.7566/JPSJ.84.065001>

Spin-Dependent Acoustic Response in the nonunitary A1 and A2 Phases of Superfluid 3He under High Magnetic Fields, S. Murakawa, A. Yamaguchi, M. Arai, M. Wasai, Y. Aoki, H. Ishimoto, R. Nomura, Y. Okuda, Y. Nagato, S. Higashitani, and K. Nagai, Phys. Rev. Lett. **114**, 105304-1-4 (2015).
DOI: 10.1103/PhysRevLett.114.105304

Fabrication of Parallel Plates for Bound State Susceptibility of Superfluid 3He -B, K. Akiyama, M. Wasai, T. Nakao, R. Nomura, and Y. Okuda, JPS Conf. Proc. **4**, 011004-1-4 (2015).
<http://dx.doi.org/10.7566/JPSCP.4.011004>

Falling 4He Crystals in Superfluid, R. Nomura, T. Yoshida, A. Tachiki, and Y. Okuda, New J. Phys. **16**, 113022-1-9 (2014). IOPselect.
doi:10.1088/1367-2630/16/11/113022

[学会発表](計 17件)

野村竜司, 高橋拓也, 峯崎裕基, 鈴木茜, 小原顕, 伊高健治, 奥田雄一、 4He 結晶の濡れ特性の制御II、日本物理学会2017年秋季大会 岩手大学、2017年。

野村竜司, 阿部陽香, 奥田雄一、変形した 4He 結晶が示す成長・融解緩和過程の非対称性、日本物理学会 2017 年秋季大会 岩手大学、2017 年。

R. Nomura, Crystallization dynamics of 4He far from equilibrium (keynote lecture), ULT 2017 Frontiers of Low Temperature Physics, Kirchhoff Institute for Physics, 2017.

R. Nomura and Y. Okuda, Contact Angles of 4He Crystals on a Rough Wall, The 28th International Conference on Low Temperature Physics, The Swedish Exhibition Centre/Gothia Towers, 2017.

R. Nomura, H. Abe, and Y. Okuda, Anomalous Asymmetry in Melting and Growth Relaxations of 4He Crystals after Manipulation by Acoustic Radiation Pressure (oral), The 28th International Conference on Low Temperature Physics, The Swedish Exhibition Centre/Gothia Towers, 2017.

R. Nomura and Y. Okuda, Supersolidity Assisted Crystallization of 4He in Aerogels, International Conference on Topological Materials Science 2017 (TopoMat2017), Tokyo Institute of Technology, 2017.

野村竜司, 松田弘文, 南茂生, J. Pollanen, W. P. Halperin, 奥田雄一、エアロジェル中における 4He の結晶化相図、日本物理学会 2016 年秋季大会 金沢大学、2016 年。

R. Nomura, H. Matsuda, A. Ochi, R. Isozaki, S. Minami, J. Pollanen, W. P. Halperin, and Y. Okuda, Crystallization of 4He in Aerogel via Mass Flow from Surrounding Solid 4He, International Conference on Quantum Fluids and Solids 2016, Prague, Czech, 2016.

R. Nomura and Y. Okuda, Avalanche Crystallization of 4He in Aerogel (oral), Avalanches, plasticity, and nonlinear response in nonequilibrium solids, Kyoto University, 2016

R. Nomura and Y. Okuda, 4He Crystals Far from Equilibrium, International

Symposium on Fluctuation and Structure out of Equilibrium 2015, Kyoto University, 2015.

高橋拓也, 峯崎裕基, 鈴木茜, 小原顕, 伊高健治, 野村竜司, 奥田雄一、4He 結晶の濡れ特性の制御、日本物理学会 第 70 回年次大会 早稲田大学、2015 年。

松田弘文, 南茂生, 野村竜司, 奥田雄一、エアロジェル中における 4He の固液相図と結晶化速度、日本物理学会 第 70 回年次大会 早稲田大学、2015 年。

奥田雄一、高橋拓也、野村竜司、微小重力下における固体 4He の平衡形、第 29 回宇宙環境利用シンポジウム、2015 年。

H. Matsuda, S. Minami, R. Nomura, and Y. Okuda, Quantum growth and self-organized criticality in 4He crystal in aerogel, Conference on Topological Aspects of Quantum Matter, National Tsing Hua University, 2014.

松田弘文, 磯崎玲, 野村竜司, 奥田雄一、温度掃引による aerogel 中の 4He 結晶成長、日本物理学会 2014 年秋季大会 中部大学、2014 年。

高橋拓也, 野村竜司, 奥田雄一、微小重力環境における 4He 結晶の平衡形観測、日本物理学会 2014 年秋季大会 中部大学、2014 年。

T. Takahashi, H. Ohuchi, R. Nomura, and Y. Okuda, Equilibrium shape of 4He crystal under zero gravity, 27th International Conference on Low Temperature Physics (LT27), Buenos Aires, 2014.

〔その他〕

<http://www.researcherid.com/ProfileView.action?returnCode=ROUTER.Success&Init=Yes&SrcApp=CR&queryString=KG0UuZjN5WmoB8bI5snMN05U38MB6NxzQBgCoEsaT9U%253D&SID=F67hyVX0Fp8HYwCgjzJ>

<https://orcid.org/0000-0002-8730-5960>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

野村 竜司 (NOMURA Ryuji)
東京工業大学・理学院・助教
研究者番号: 00323783