

令和 2 年 6 月 19 日現在

機関番号：32612

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17H02925

研究課題名(和文)ヘリウム薄膜における量子弾性効果と超固体現象の解明

研究課題名(英文)Novel Elastic Effect and Possible Supersolidity in Helium Films

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) 14,900,000円

研究成果の概要(和文)：2次元量子多体系であるグラファイト(Gr)表面上ヘリウム(4He)薄膜の弾性率が低温で増大する「弾性異常」を発見し、更に吸着第2層で超流動と剛性が共存することを示唆する結果を得た。弾性異常の存在から、Gr上He薄膜が他He薄膜と同様に、局在状態と空間的に広がった励起状態を有し、吸着量の増加による超流動の発現は局在状態と広がった状態間の「量子相転移」と解釈できることを明らかにした。これはヘリウム薄膜の諸性質が「量子相転移」描像で普遍的に理解できることを示す重要な成果である。また六方晶窒化ホウ素(hBN)表面上4He薄膜の弾性と超流動性がGr上薄膜と定性的に同様の挙動を示すことも明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

グラファイト(Gr)上ヘリウム(He)薄膜は最も古くから知られる2次元系であるが、近年の2次元系研究潮流の中で改めて注目されている。特に超流動固体や量子スピン液体などの新奇量子相の発現が期待される。本研究は弾性測定によりHe薄膜のエネルギー構造を解明するというユニークなアプローチで、局在状態と広がった状態間の量子相転移描像が他のHe薄膜同様に成り立つことを明らかにした。また超流動性と剛性の共存を示唆する結果を得ており、超流動固体や量子液晶の新しい例として学術的重要性は高い。さらに六方晶窒化ホウ素表面上He薄膜の実験を初めて行い、新しい2次元量子多体系を開拓しつつある。

研究成果の概要(英文)：We discovered "elastic anomaly" (increase in shear modulus at low temperatures) in 4He films adsorbed on graphite (Gr), a two-dimensional quantum many-body system. We also observed a coexistence of superfluidity and rigidity in the second layer. Our results shows that He films on Gr are characterized by "quantum phase transition picture", in which a insulator - superfluid transition occurs by the gap closure of localized and spatially extended states. We have studied elasticity and superfluidity of 4He films on the hexagonal boron nitride (hBN) surface, and have found elastic anomalies and superfluid transitions both of which are qualitatively same as those of the films on Gr.

研究分野：低温物理学

キーワード：物性物理 低温物性 ヘリウム 超流動 弾性 量子相転移 グラファイト 窒化ホウ素

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

粒子の運動が平面に制限された「2次元系」は、古くから物性物理の重要な研究テーマであったが、2005年のグラフェンの実現によってデバイス応用を含む一大研究分野に成長した。固体表面に吸着したヘリウム薄膜はユニークな2次元量子多体系として知られ、2016年のノーベル物理学賞の対象となったコストリッツ-サウレス転移の実験的検証や、 ^3He 薄膜における量子スピン液体の先駆的研究など、物理学の発展に重要な貢献をなしてきた。

研究代表者らは、2010年頃に行ったナノ多孔体中ヘリウムの研究で偶然に、ヘリウム薄膜の弾性が単原子層程度の膜厚では低温で増大する現象「弾性異常」を発見した(図1)。この現象は当初ヘリウム特有の現象と考えられたため、本研究課題では「量子弾性効果」と名付けたが、その後量子効果の弱いネオンや水素の薄膜でも同様の現象を発見したため、「弾性異常」(Elastic Anomaly)と呼ぶ。その後の本研究を含む一連の実験により、この弾性異常は吸着分子が固体表面に強く吸着された「局在状態」から、エネルギーギャップで隔てられた空間的に広がった状態への熱励起に起因すること、また吸着量を増やすにつれギャップは連続的に減少し、ギャップが消失した臨界吸着量以上で広がった状態をHe原子が占有し、超流動が「量子相転移」として起こることが明らかになった。

局在状態でのギャップの存在は、乱れた基板上的ヘリウム薄膜に共通する普遍的性質と考えられる。一方、グラファイト上ヘリウム薄膜(ボソンの ^4He 、フェルミオンの ^3He)では、グラファイトの周期ポテンシャルとHe原子間相互作用の効果により、面密度変化に対し10種類近くの多彩な相を示す。このようなグラファイト上ヘリウム薄膜での多様な量子状態、とりわけ、グラファイト上 ^4He 吸着第2層目で存在が議論されている超流動固体(超固体)状態や ^3He 量子スピン液体が、「局在状態—広がった状態間の量子相転移」の描像と両立するのかに興味を持たれる。この探求は、グラファイト上ヘリウム薄膜の多様な量子相の発現機構に斬新な視点を提供し、また更に新奇な量子相の発見に導くものである。

2. 研究の目的

本研究では、研究代表者が ^4He 薄膜で発見した弾性異常の普遍性を調べ、 ^4He 超固体や2次元 ^3He 超流動などの、He薄膜における新奇量子現象の研究を展開し、「2次元量子物質」としてのHe薄膜の新しい可能性を探求する。具体的には、(1)ガラス基盤上 $^4\text{He}\cdot^3\text{He}$ 薄膜の弾性測定を行い、量子臨界現象の粒子統計効果を調べることで、(2)グラファイト上 $^4\text{He}\cdot^3\text{He}$ 薄膜に対して弾性と超流動性の同時測定を行い、 ^4He 超固体状態の存否を検証し、 ^3He 薄膜の固体・液体相での弾性異常を探求すること、(3)カーボンナノチューブ、グラフェンのマイクロサイズ振動子を開発し、吸着He薄膜の弾性および超流動特性を調べることを目標とした。

グラファイト上ヘリウム薄膜の研究開始後、多方面からの研究の進展があった。このため当初の研究計画を発展的に変更して、以下のような分子薄膜の弾性研究、六方晶窒化ホウ素表面上ヘリウム薄膜の研究を進めた。

3. 研究の方法

本研究では新しい実験手法として、吸着分子薄膜の弾性(シアモジュラス)を直接測定できるねじれ振動子を開発した(図2)。吸着基盤である多孔質ガラスやグラファイト(グラフォイル)そのものをねじれロッドとするねじれ振動子を強制振動させ、共振周波数と散逸を測定する。吸着量が約1原子層程度の分子薄膜では、共振周波数が低温で増大するとともに散逸が極大を示す。これを弾性異常と呼ぶ。その温度依存性を、「2バンド熱活性化モデル」で解析した。即ち、局在状態と広がった状態の2つのエネルギーバンドがギャップ Δ を隔てて存在し、弾性はバンド間の熱励起により決まる。殆どの実験データは、ギャップの値に分布を仮定したモデルでよく説明され、実験データのフィッティングからギャップ Δ の吸着量依存性を求めた。

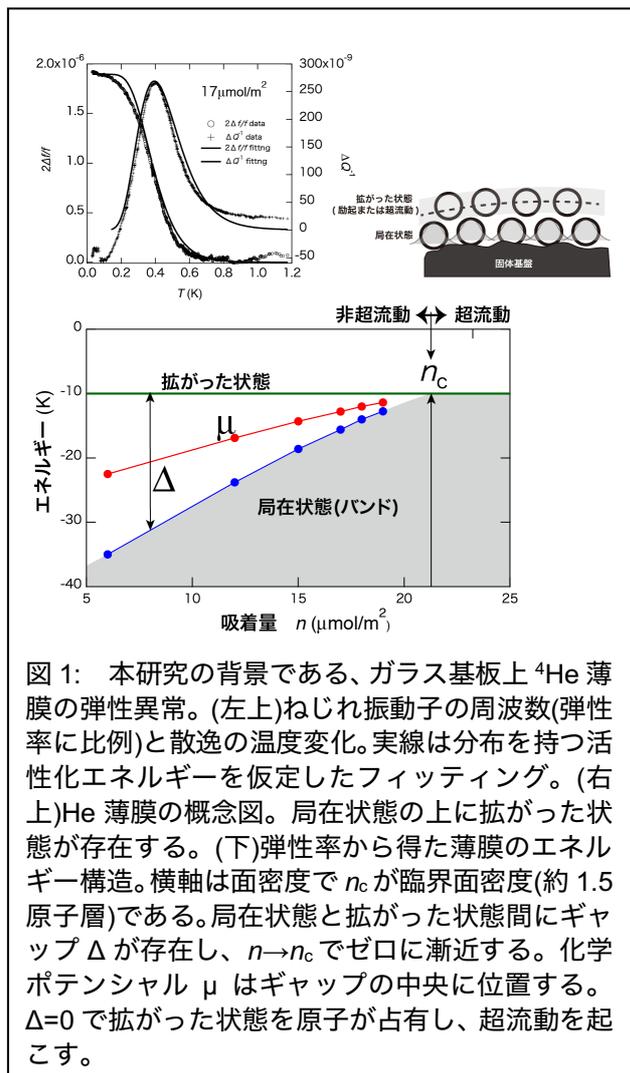


図1: 本研究の背景である、ガラス基板上 ^4He 薄膜の弾性異常。(左上)ねじれ振動子の周波数(弾性率に比例)と散逸の温度変化。実線は分布を持つ活性化エネルギーを仮定したフィッティング。(右上)He薄膜の概念図。局在状態の上に広がった状態が存在する。(下)弾性率から得た薄膜のエネルギー構造。横軸は面密度で n_c が臨界面密度(約1.5原子層)である。局在状態と広がった状態間にギャップ Δ が存在し、 $n \rightarrow n_c$ でゼロに漸近する。化学ポテンシャル μ はギャップの中央に位置する。 $\Delta=0$ で広がった状態を原子が占有し、超流動を起こす。

本研究では、以下の薄膜の弾性測定(一部は超流動密度測定)を行った。(1)多孔質ガラス基板に吸着した³He、ネオン(²⁰Ne)、水素薄膜。特に、水素薄膜ではボース同位体の H₂,D₂ とフェルミオン同位体の HD について詳細な弾性測定に成功し、超流動水素の可能性に定量的な結論を与えた。(2)グラファイト上⁴He 薄膜の弾性及び超流動特性の測定。(3)グラファイトと同様の蜂の巣劈開面を持ち、吸着ヘリウム第1層目から超流動固体状態の発現が計算機シミュレーションで予想されている、六方晶窒化ホウ素(h-BN)表面上⁴He 薄膜に対して、超流動検出用ねじれ振動子を作成して超流動と弾性の性質を調べた。また、本研究課題申請時に計画していたグラフェン・ナノチューブ振動子による弾性測定は、振動子デバイスのデザインを行ったが、上記研究の進展により、デバイス作成には至らなかった。

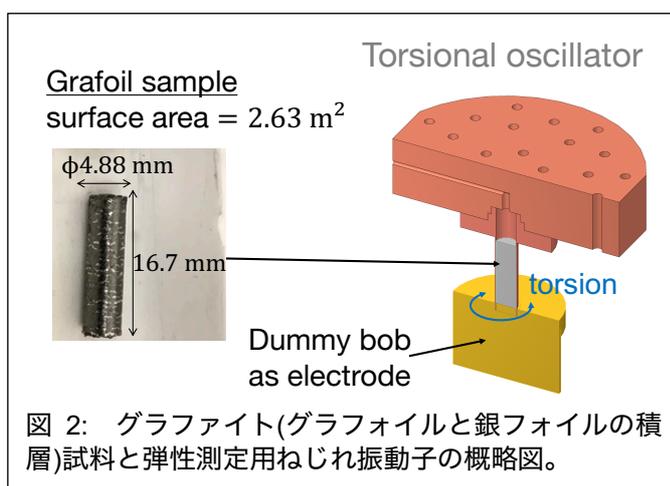


図 2: グラファイト(グラフォイルと銀フォイルの積層)試料と弾性測定用ねじれ振動子の概略図。

4. 研究成果

1) ヘリウム3 薄膜の弾性異常と量子相転移

本研究の主課題であるグラファイト上ヘリウム薄膜の研究に先立ち、多孔質ガラス基板上分子薄膜の弾性測定を行い、次のような重要な知見を明らかにした。ボソンの⁴He 薄膜では局在状態と広がった状態がギャップ Δ を隔てて存在し、 Δ は臨界吸着量 n_c (約 1.8 原子層) に向かってべき乗則 ($\Delta \propto (n_c - n)^\alpha$, α は約 1.6) 消失する。 n_c 以上の吸着量では絶対零度で広がった状態を⁴He が占有することで超流動が発生する。³He 薄膜でも⁴He と同様の弾性異常を発見し、量子臨界吸着量 n_c も同様に存在すること、即ちこれまで³He 薄膜では明確でなかった量子相転移の存在が初めて明らかになった。この結果は、³He 薄膜においても、平坦な基板上かつ超低温下では n_c 以上で⁴He と同様に 2 次元(トポロジカル)超流動が実現しうることを初めて示す重要な成果である。

2) ネオンおよび水素同位体薄膜の弾性異常

次に、ネオンおよび 3 種類の水素同位体薄膜に対しても弾性測定を行い、弾性異常を全ての分子薄膜で観測した。しかしその吸着量依存性は、ヘリウム薄膜の場合と異なり、弾性異常を示す温度はネオンでは約 5K に留まった。これはネオンが古典的でギャップが閉じる前に自己組織的に固化したと解釈できる。興味深いのは水素薄膜で、3 種類の同位体全てで 3 つの弾性異常が観測された。その挙動は定性的には同位体によらず同じで、最低温度の弾性異常は吸着量の増大とともに約 1K まで低下して消失した(図 3)。3 つの異常の同定から、H₂ 薄膜では最表面の分子が 1K まで動きやすい液体状態にあるが、より低温では固化することがわかった。これは、水素薄膜の表面が三重点の 1/10 程度の低温で超流動寸前の過冷却状態にあるが、超流動にはならないことを意味する。この結果は、水素薄膜の超流動の可能性に対して初めて定量的な結論を与える成果である。水素は薄膜状態でも熱平衡では超流動を示し得ないが、水素分子を広げた状態に非平衡励起できれば、超流動を示す可能性がある。現在代表者のグループでは、この非平衡超流動水素の実現に向けて実験の準備を進めている。

以上の成果は、弾性異常が薄膜のエネルギー構造に起因して、多種多様な分子種で発現する普遍的現象であることを強く示唆する。今後、酸素や窒素、メタンや C₆₀ などの有機分子、水、蛋白質や高分子などの吸着薄膜での弾性に興味を持たれる。また、触媒表面の水素原子のような、化学吸着薄膜の状態研究にも役立つと期待される。

3) グラファイト上ヘリウム薄膜の弾性異常

グラフォイル(大表面積グラファイトシート)を層状に重ね銀フォイルで熱溶着した棒状試料をねじれ振動子ロッドに封入して、吸着⁴He 薄膜の弾性測定を 3 原子層までの吸着量域で行った。グラファイト上ヘリウムは明瞭な層構造を有する点が、ガラス基板上薄膜とは異なる。異なる温度で 2 つの弾性異常を観測した。そのうち一つは約 0.5K で生じ、1 層目のみに存在する。二つ目の異常は 1-2 層目で観測され、ガラス基板上ヘリウムと類似して吸着量の増大に伴い異常を示す温度が低下する(図 4)。ところがガラス基板とは異なり、約 1.5-1.8 層で異常温度が一定に留まりプラトーを示す。それ以上の吸着量で再び異常温度は低下し、約 2.3 層で消失した。別のねじれ振動子で 3 層目に超流動転移を観測したことから、弾性異常の消失はガラス基板と同様の量子相転移の存在を意味している。

異常温度がプラトーを示す領域は、吸着第 2 層が第 1 層目の周期ポテンシャルの影響を受けつつも超流動性を示すという、いわゆる「超流動—密度波共存状態」(一種の超固体状態)が存在するとされる吸着量領域と一致する。従ってこの吸着領域で弾性異常が観測されたことは、第 2 層目で超流動性と剛性が共存することを意味する。これはヘリウム薄膜における「量子液晶」状態または複数対称性破れ(ゲージおよび並進対称性)を示唆する画期的な成果である。現在、この共存の最終的な検証を目指して複数の実験を計画している。

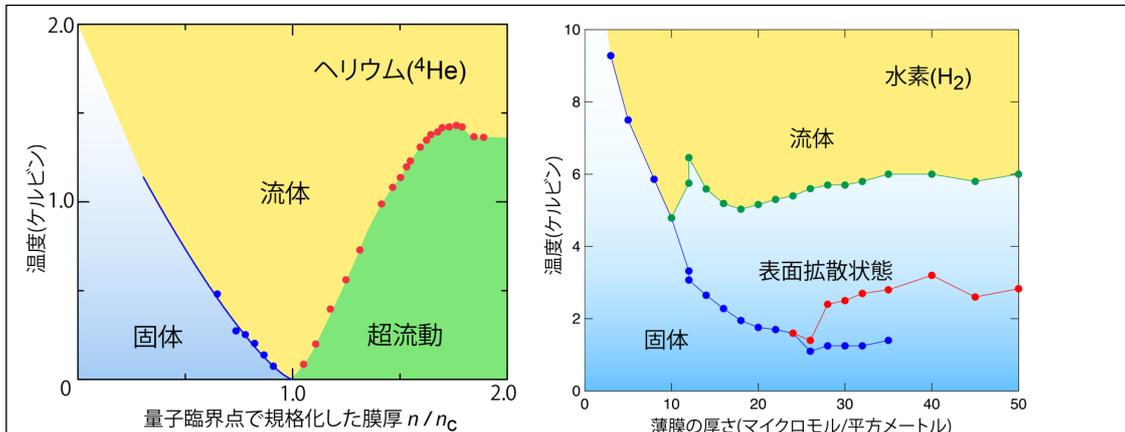


図3: 弾性異常の温度から得られる相図。左が⁴He、右が水素薄膜の相図を示す。両者ともに膜の厚さを増やすと固化温度が急激に減少し、ヘリウムは量子臨界点で超流動になる。水素では約1Kまで表面分子の拡散が保持され、過冷却液体状態にある(青点)。

また本実験により、弾性異常が約2原子層で消失して超流動状態に移行することがわかった。これはグラファイト上ヘリウム薄膜においても、局在状態と広がった状態による量子相転移の描像が適用でき、代表者が提案するヘリウム薄膜の「量子相転移描像」が基板によらない普遍的概念であることをサポートする成果である。

4) 六方晶窒化ホウ素表面上ヘリウム薄膜の超流動と弾性

グラファイト上ヘリウム薄膜は下地の周期ポテンシャルとヘリウムの量子性、原子間相互作用の三つが競合することで多種多様な構造と量子状態を生み出すため、2次元ヘリウムのモデル系として半世紀以上にわたり盛んに研究されてきた。一方、グラファイト以外の平坦表面を用いた2次元ヘリウムの研究は、驚くほど少ない。グラファイト上ヘリウム薄膜では近年、上記の超流動密度波共存状態(量子液晶)と³He量子スピン液体が注目されてきた。このような状態はグラファイト以外の吸着基板でも実現する可能性がある。そこで本研究では六方晶窒化ホウ素(h-BN)に着目した。h-BNはグラファイトに近い格子定数の蜂の巣構造(BとNが交互に配置)を有し、近年グラフェンの支持基板として用いられている。ごく最近 Reatto らはh-BN上ヘリウムの量子モンテカルロシミュレーションを行い、⁴Heが第1層目でも超流動を示す可能性があることを示した。第1層目で超流動が実現されれば、それは基板の強い周期ポテンシャルの影響を受けた超流動固体状態の可能性が高い。

本研究では、市販のh-BN粉末(大きき数 μm)を固めた大表面積の試料を作成し、これをねじれ振動子の重り部分として吸着⁴Heの超流動特性を調べた。このねじれ振動子では試料の弾性は直接測定できないが、薄膜の弾性変化が僅かに共振周波数に影響を及ぼすことから、弾性の温度変化を調べることも可能である。その結果、弾性異常と超流動の吸着量依存性は、グラファイト上⁴Heのそれと定性的に同じであることが明らかになった。即ち、吸着第1層では約0.5Kに弾性異常が存在し、高温で第2の弾性異常が発現する。第2の異常は2層目完結付近で消失し、3層目で超流動が発現する。

以上の結果は更に詳細な測定を要するが、h-BN上ヘリウムがグラファイトと同様に2次元ヘリウムに多様な量子相をもたらす系であることを示す成果である。今後両者を相補的に研究することで、新奇な量子相の発現と機構解明に向けた精緻な議論ができると期待される。

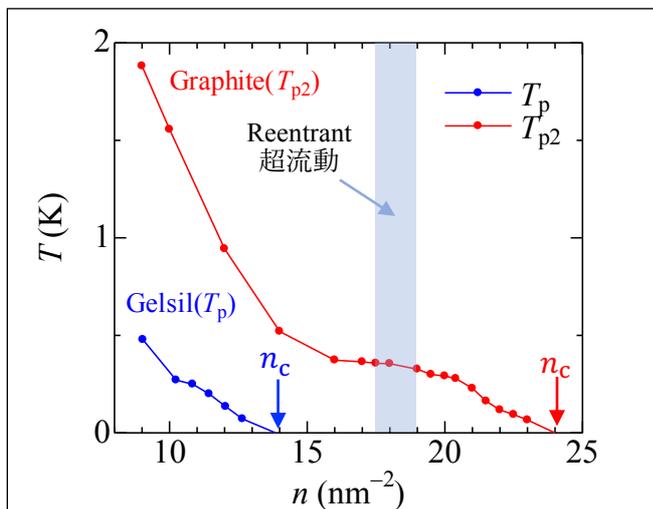


図4: グラファイト上⁴He薄膜における第2の弾性異常温度(散逸ピーク温度) T_{p2} の吸着量依存性(赤色)。15-20nm⁻²でプラトーを持ち、別の実験で示されるリエントラント超流動領域と重なるため、超流動と剛性の共存が示唆される。またガラス基板(Gelsil 多孔ガラス)上での異常温度。青色はガラス基板

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Takahiko Makiuchi, Katsuyuki Yamashita, Michihiro Tagai, Yusuke Nago and Keiya Shirahama	4. 巻 123
2. 論文標題 Multiple Diffusion-Freezing Mechanisms in Molecular-Hydrogen Films	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 245301~245301
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevLett.123.245301	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Takahiko Makiuchi, Katsuyuki Yamashita, Michihiro Tagai, Yusuke Nago and Keiya Shirahama	4. 巻 88
2. 論文標題 Elastic Anomaly of Thin Neon Film	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 034601-034601
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.7566/JPSJ.88.034601	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 T. Makiuchi, M. Tagai, Y. Nago, D. Takahashi, and K. Shirahama	4. 巻 98
2. 論文標題 Elastic anomaly of helium films at a quantum phase transition	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 235104~235104
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.98.235104	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計10件（うち招待講演 1件/うち国際学会 7件）

1. 発表者名 巻内崇彦, 山下勝之, 互井通裕, 永合祐輔, 白濱圭也
2. 発表標題 吸着薄膜における弾性異常
3. 学会等名 日本物理学会 第74回年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 永合祐輔, 三吉佑典, 石黒亮輔, 白濱圭也
2. 発表標題 ヘリウム薄膜量子相転移の研究のためのフォノン生成器の作製
3. 学会等名 日本物理学会 第74回年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Takahiko Makiuchi, Katsuyuki Yamashita, Michihiro Tagai, Yusuke Nago, Keiya Shirahama
2. 発表標題 Elastic Anomaly of Helium, Hydrogen and Neon Films on Disordered Substrate
3. 学会等名 APS March Meeting 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Keiya Shirahama
2. 発表標題 Elastic Anomalies in Adsorbed Films of Helium, Hydrogen and Neon
3. 学会等名 International Symposium on Quantum Fluids and Solids (QFS2018) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 K. Yamashita, T. Makiuchi, M. Tagai, Y. Nago, and K. Shirahama
2. 発表標題 Elasticity Measurements of Hydrogen Films Adsorbed on a Porous Glass
3. 学会等名 International Symposium on Quantum Fluids and Solids (QFS2018) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 T. Makiuchi, M. Tagai, K. Yamashita, Y. Nago, D. Takahashi, and K. Shirahama
2. 発表標題 Quantum Phase Transition of Thin He Films on a Disordered Substrate
3. 学会等名 International Symposium on Quantum Fluids and Solids (QFS2018) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 K. Kuwahara, T. Shimoda, T. Terabayashi, M. Mukaida, T. Makiuchi, Y. Nago, J. Yan, and K. Shirahama
2. 発表標題 Toward the direct observation of chiral edge mass current in quasi-2D $^3\text{He-A}$
3. 学会等名 International Symposium on Quantum Fluids and Solids (QFS2018) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 T. Makiuchi, K. Yamashita, M. Tagai, Y. Nago, and K. Shirahama
2. 発表標題 Elasticity Measurements of Neon Films on a Porous Glass Substrate
3. 学会等名 International Symposium on Quantum Fluids and Solids (QFS2018) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 T. Tani, S. Murakawa, R. Wada, K. Kaiya, K. Yamada, K. Itoh, Y. Mita, and K. Shirahama
2. 発表標題 Fabrication of Micro-slit Structures for Studies of Topological Properties of Quasi-two Dimensional Superfluid ^3He
3. 学会等名 International Symposium on Quantum Fluids and Solids (QFS2018) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Y. Nago, Y. Morikawa, Y. Tanaka, K. Kato, T. Takagi, H. Maki, S. Murakawa, and K. Shirahama
2. 発表標題 Nanomechanical Wire Resonator for Probing Quantum Vortex in Superfluid He
3. 学会等名 International Symposium on Quantum Fluids and Solids (QFS2018)
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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
--	---------------------------	-----------------------	----