

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 28 日現在

機関番号：13901

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011～2013

課題番号：23540404

研究課題名(和文) ナノ細孔内に形成した1次元ヘリウム3流体の量子状態の解明

研究課題名(英文) Investigation on quantum state of one-dimensional helium-3 fluid formed in nanochannels

研究代表者

松下 琢 (Matsushita, Taku)

名古屋大学・理学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：00283458

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,000,000円、(間接経費) 1,200,000円

研究成果の概要(和文)：ヘリウム4でコートした直線的なナノ細孔に吸着した希薄ヘリウム3の低温量子状態を検証するため、パルスNMR測定系を整備し、帯磁率と核磁気緩和の測定を行った。その結果得られたフェルミ温度の密度依存性や状態密度から、1原子層の0.7%以下の非常に希薄なヘリウム3は、軸方向のみに運動自由度をもつ純1次元流体として低温で縮退状態に至ることが強く示唆された。また同じ細孔中のヘリウム3薄膜の核磁気緩和測定からは、従来知られていない層間の速い原子交換など、薄膜中の原子運動に関する微視的情報が新たに得られた。

研究成果の概要(英文)：To examine the low-temperature quantum state of dilute ^3He adsorbed in straight nanochannels coated with ^4He film, a pulsed NMR measuring system was arranged, and the susceptibility and nuclear relaxation were measured on the dilute ^3He . Obtained results such as density dependence of the Fermi temperature and density of states strongly suggest that very dilute ^3He less than 0.7% coverage falls in to the degenerate state at low temperatures, as a genuine one-dimensional fluid with a degree of motional freedom only along the channel axis. From nuclear relaxation measurements on pure ^3He film in the nanochannels, microscopic information on atomic motion in the film, including rapid interlayer particle exchange which has not been recognized so far, was newly obtained.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性

キーワード：一次元フェルミ系 朝永ラッティンジャー液体 ヘリウム薄膜 ナノ細孔 核磁気共鳴

1. 研究開始当初の背景

1次元系ではランダウのフェルミ液体論は破綻し、縮退状態で明確なフェルミ面をもたず、スピンと電荷(質量)が異なる励起をもつような特異な物性を持つ朝永ラッティンジャー液体となることが理論的に示されている。このような液体の実在については、近年になって、カーボンナノチューブ上の電子や半導体量子細線、擬1次元量子スピン系などでこの液体を特徴付ける実験的な証拠が観測されはじめた。

一方、申請者らのグループは、ヘリウムをナノメートルサイズの細孔に吸着し1次元量子流体を生成する試みを世界に先駆けて行って来た。細孔内に吸着されたヘリウム流体層において、温度を下げることで流体の特徴的な長さ(熱的ドブロイ波長など)が細孔周より長くなると、細孔断面内の自由度が消失し、薄膜の状態にありながら細孔の軸方向の運動自由度しか存在しない1次元系が実現すると考えられる。申請者らは、直線的なナノ細孔をもつシリカ系多孔体 FSM を用いて、ヘリウム4薄膜に浮かべた希薄ヘリウム3について2次元古典気体から1次元系へのクロスオーバーと解釈できる比熱を観測した。この1次元系と考えられるヘリウム3流体は電子系とは異なる相互作用を持つ朝永ラッティンジャー液体の新しいモデルとなりうる系であるが、比熱結果は密度依存性などが1次元気体とは定性的に異なり、その量子状態を解明することが重要な課題となっていた。この系についてはロンドン大でNMRの高温での実験が開始するなど国際的にも注目されており、研究の進展が急務となった。

また基盤にヘリウム4のみを吸着させた場合、密度が1原子層を少し超えたところで超流動層が現れる。このことは強い吸着ポテンシャルによって固層になる吸着第一層とその上の流体層といったいわゆる inert layer 模型で理解されてきたが、その詳細は明らかではない。ナノ細孔中では最近1次元超流動と考えられる新しい現象が観測されはじめており、原子の吸着状態の微視的情報を得ることが必要となって来た。

2. 研究の目的

1次元ナノ細孔中のヘリウム3の研究において、これまで用いられてこなかった核磁気共鳴法を新たに導入し、帯磁率や核磁気緩和の測定から、比熱で1次元系にクロスオーバーしていることが示唆されたヘリウム4薄膜上の希薄ヘリウム3の低温量子状態、特にその1次元性を明らかにすることを第一の目的とした。またデータの対照に用いるためヘリウム3のみの薄膜の核磁気緩和の測定も行い、さらにそこから単一種のヘリウムを基盤に吸着した場合の吸着原子の運動状態に関する微視的情報を引き出すことも目的とした。

3. 研究の方法

本研究では新たにパルス NMR 法を導入するため、小型の静磁場マグネットの製作など測定系の製作整備から研究を開始した。

ヘリウムを吸着させる基盤としては豊田中央研究所から研究用に提供された FSM(C14)を使用した。この多孔体基盤は蜂の巣状に配列した孔直径 2.4nm 長さ約 300nm の直線的な細孔をもつシリカ粉末である。

FSM の細孔をヘリウム 4 薄膜でコートしそのうえに浮かべた希薄ヘリウム 3 の 1 次元状態を得るには、そのフェルミエネルギーが細孔周方向運動の励起エネルギーより小さい必要があり、1 原子層完結吸着量の 1% 以下という極微量のヘリウム 3 についての測定が必要となる。そのため、比較的強度が得られるヘリウム 3 のみの薄膜の核磁気緩和測定から研究を開始した。

ナノ細孔中 0.1 から 1.6 原子層のヘリウム 3 薄膜について、0.5-6K の温度での系統的な核磁気緩和の測定から吸着原子の運動の研究を行った。その一方測定の過程で、ノイズ軽減など測定系の最適化を行い、信号取得の効率化、自動化をすすめた。

その後、比熱測定によって得られたヘリウム 4 薄膜の相図を参照して適切なヘリウム 4 コート量を定め、そのうえに浮かべた希薄ヘリウム 3 (1 原子層の 0.4 から 2.5%) の帯磁率と核磁気緩和の測定を行い、その低温量子状態の検証を行った。

4. 研究成果

(1) ナノ細孔中に吸着した単層ヘリウム 3 における熱励起運動から量子トンネリングへの移行の観測と 1 次元細孔形状に起因すると考えられる核磁気緩和の発見

図 1 に単層の吸着ヘリウム 3 の核磁気緩和時間と比熱の典型例を示した。上からスピン格子緩和時間 T_1 、スピンスピン緩和時間 T_2 、比熱である。この領域では、帯磁率は温度の逆数と密度に比例し非縮退状態にあることが確認された。 T_1 の特徴的な極小と、

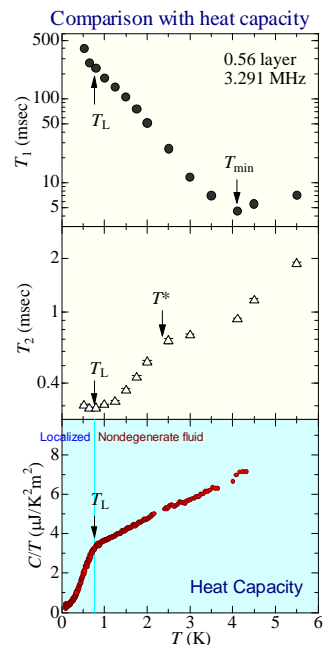


図1 1次元細孔中 0.56 層の吸着 ³He 薄膜の核磁気緩和時間と比熱

高温での T_1 と T_2 の不一致は、より大きな細孔を持つ多孔質ガラスを用いた実験でも観測されており、低次元流体の双極子緩和において低温で相関時間が長くなった場合の振舞と解釈される。 T_1 の極小は相関時間が NMR 周波数の逆数程度であることを示しており、強い吸着ポテンシャルによって束縛されたこの吸着第 1 層においても量子固体ヘリウムと同程度の原子運動が存在することが明らかになった。 T_1 極小の温度は密度に対し減少するため、運動は吸着サイト間の粒子交換によると考えられる。また緩和時間の温度変化は 1K 以下でゆるやかになり量子トンネリングへの移行が示唆された。

また他の吸着基盤上のヘリウム 3 と異なる特徴として、 T_2 の温度変化が肩を持つような異常が観測された (図中 T_2^*)。この異常の起こる温度は T_1 極小と同様の密度依存性をもつため、不純物等の影響ではなく直線的なナノ細孔形状に起因していると考えられる。

単層膜では比熱が低温で指数的に減少する振る舞いが吸着基盤によらず普遍的にみられ、吸着原子の局在化によるものと考えられている (図中 T_L)。この局在化に伴う核磁気緩和時間の変化を初めて観測した。この「局在化」において T_1 は増大を示す一方で T_2 もやや増大しており、相関時間が長くなる単なる局在化ではなく原子配置にも変化を生じている可能性が示唆された。

(2) 2 層のヘリウム 3 薄膜における非常に速い層間の粒子交換の発見

吸着原子第一層が完結し、そのうえに第 2 層の原子が吸着され始めた状態のヘリウム 3 薄膜の核磁気緩和については、過去にあまり系統的な研究例がないが、本研究では 1.6 層までの測定を実施した。その結果、この領域における核磁気緩和時間の密度依存性は単層の場合に比べ非常に小さいことがわかった。図 2 に 1.56 層のヘリウム 3 薄膜における横磁化の緩和曲線を示した。一桁以上の範囲で単一の指数関数的な緩和が観測されることから、層間に非常に速い粒子交換が存在し、NMR 周波数の時間スケールでは 2 層は一

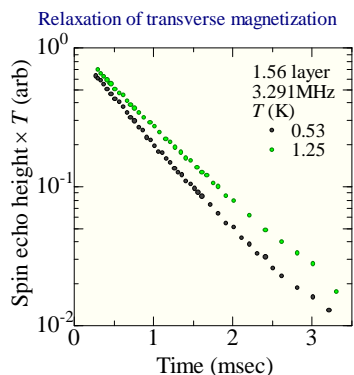


図 2 1 次元細孔中 1.56 層の吸着 ^3He 薄膜の横磁化緩和曲線

体のスピン系として観測されることが示された。核磁気緩和の弱い密度依存性は流動性の低い第一層で主として緩和が起きるということから理解できる。この結果は従来の固層の上に存在する流体層という描像に修正を促す結果である。また比熱測定において流体層の比熱が気体に比べ 1 割程度と非常に小さいことが知られているが、この層間の粒子交換がその主因と考えられる。

これら (1) および (2) の結果はこれまで物理学会ほか 2 度の国際学会で発表し、2 編の論文にまとめた。

(3) ヘリウム 4 薄膜でコートした細孔中の希薄ヘリウム 3 の 1 次元量子流体状態の検証

FSM の孔径 2.4nm の細孔を約 1.4 層のヘリウム 4 薄膜でコートし、1 層吸着量の 0.4 から 2.5% という非常に希薄なヘリウム 3 をさらに吸着させ、核帯磁率と核磁気緩和について 0.13K までの低温での初めての系統的な観測を行った。データの解釈を単純にするため、ヘリウム 4 は 2 層目の流体層が存在するが、超流動転移温度は測定範囲外の 50mK 以下になるように調整を行った。

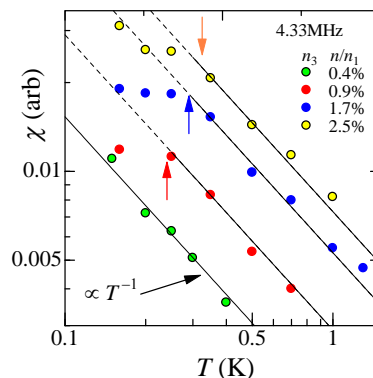


図 3 ^4He 薄膜でコートされた 1 次元細孔中の希薄 ^3He 流体の帯磁率

観測された T_1 はヘリウム 3 単体に比べると 3 桁以上短く、吸着ヘリウム 3 は高い流動性を保持した状態にあることが確認された。図 3 に観測された帯磁率の一部を示した。0.4K 以上においては、帯磁率は温度の逆数と密度に比例し非縮退流体であることがわかるが、矢印で示した温度 T_F^* 以下では帯磁率が一定になる振る舞いが見られた。これはヘリウム 3 流体がフェルミ縮退を起こしたと考えられ、 T_F^* はフェルミ温度と同程度で比例する温度であると考えられる。さらに詳細に密度を変えて系統的な測定を行った結果、最も希薄な 0.4% 付近では、密度が小さい方が帯磁率が大きくなるような振る舞いが観測された。これは低エネルギーで状態密度が大きくなる 1 次元系の特徴と合致する。0.8% 以上の密度では T_F^* の密度変化が 0.25K 付近で非常に小さくなり、周方向運動の励起による大き

な状態密度の存在が示唆された。窒素吸着によって見積られる吸着面積を単純に細孔周でわった値の 45%を実効的な細孔長であると仮定すると、 T_F の密度変化や T_F 以下の帯磁率から見積られる状態密度は、0.25K に周方向運動の励起をもつ 1 次元系に定量的にも合致する結果が得られた。このように本研究では、0.7%以下の希薄なヘリウム 3 が、細孔軸方向のみの運動自由度をもつ純 1 次元流体として、低温で縮退を起こしていることを強く示唆する結果を得ることができた。またこの領域の T_2 は、低温で温度にべき的に減少し、その指数が密度依存を示すような振る舞いを示しており、この流体の 1 次元的な特徴を捉えている可能性が示唆される。これらの結果については、さらにデータを加えて論文発表する準備を進めている。

この系では、細孔径を変えることでヘリウム 3 間の相互作用を制御できることが理論的に示唆されている。今後、測定範囲を低温まで拡張してデータの蓄積を行い、また理論研究の発展も促すことで、この新しい 1 次元量子流体の物理の解明がさらに進むことが期待される。

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 3 件)

T. Matsushita, R. Kawai, A. Kuze, M. Hieda and N. Wada, "Nuclear Spin Relaxation Characteristic of Submonolayer ^3He Films in Nanochannels", *J. Low Temp. Phys.* **175**, 407-413 (2014), 査読有, DOI:10.1007/s10909-013-1084-2.

T. Matsushita, A. Kuze, R. Kawai, M. Hieda and N. Wada, "Atomic motion in low-coverage helium films adsorbed in FSM nanochannels", *J. Low Temp. Phys.* **171**, 657-663 (2013), 査読有, DOI:10.1007/s10909-012-0815-0.

Y. Nakashima, Y. Minato, T. Matsushita, M. Hieda and N. Wada, "Phase diagram of ^4He adsorbed in 1D 2.4 nm nanopores of FSM", *J. Phys.: Conf. Ser.* **400**, 012055-1-4 (2012), 査読有, DOI:10.1088/1742-6596/400/1/012055.

[学会発表](計 13 件)

松下琢、紅林克哉、河合亮佑、檜枝光憲、和田信雄「1 次元ナノ細孔に吸着した ^3He 流体の 1 次元縮退状態の検証」物性研短期研究会「スーパーマターが拓く新量子現象」、東京大学物性研究所、2014/4/17.

紅林克哉、河合亮佑、松下琢、檜枝光憲、和田信雄「NMR による ^4He コートしたナノ細

孔中の ^3He の 1 次元状態の探索」日本物理学会第 69 回年次大会、東海大学、2014/3/30.

紅林克哉、河合亮佑、久世敦士、松下琢、檜枝光憲、和田信雄「1 次元ナノ多孔体 FSM に吸着した ^3He 薄膜の NMR 測定」日本物理学会 2013 年秋季大会 [物性]、徳島大学、2013/9/28.

T. Matsushita, R. Kawai, K. Kurebayashi, D. Tokioka, M. Hieda, and N. Wada, "NMR study on motional state of helium film adsorbed in nanochannels of FSM silicate" International Symposium on Quantum Fluids and Solids, QFS2013, Matsue, Japan, 2013/8/5.

河合亮佑、久世敦士、時岡大悟、久野将也、松下琢、檜枝光憲、和田信雄「ナノ多孔体 FSM の 1 次元細孔に吸着した非縮退 ^3He 流体の NMR」日本物理学会第 68 回年次大会、広島大学、2013/3/29.

河合亮佑、久世敦士、松下琢、檜枝光憲、和田信雄「ナノ多孔体 FSM の 1 次元細孔に吸着した ^3He 流体の NMR 測定」日本物理学会 2012 年秋季大会 [物性]、横浜国立大学、2012/9/20.

T. Matsushita, A. Kuze, R. Kawai, M. Hieda, and N. Wada, "Atomic motion in low-coverage helium film adsorbed in FSM nanochannels" QFS2012: International Symposium on Quantum Fluids and Solids, Lancaster, UK, 2012/8/20.

久世敦士、河合亮佑、松下琢、檜枝光憲、和田信雄「1 次元ナノ多孔体 FSM に吸着した ^3He 古典流体の NMR 測定 II」日本物理学会第 67 回年次大会、関西学院大学、2012/3/26.

久世敦士、松下琢、檜枝光憲、和田信雄「1 次元ナノ多孔体 FSM に吸着した ^3He 古典流体の NMR 測定」日本物理学会 2011 年秋季大会 [物性]、富山大学、2011/9/23.

[その他]

ホームページ等
<http://ult.phys.nagoya-u.ac.jp>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

松下 琢 (MATSUSHITA, Taku)
名古屋大学・大学院理学研究科・助教
研究者番号: 00283458

(2)研究分担者
該当なし

(3)連携研究者
該当なし

(4)研究協力者

久世 敦士 (KUZE, Atsushi)
名古屋大学・大学院理学研究科・前期課程
院生

河合 亮佑 (KAWAI, Ryosuke)
名古屋大学・大学院理学研究科・前期課程
院生

紅林 克哉 (KUREBAYASHI, Katsuya)
名古屋大学・大学院理学研究科・前期課程
院生