

論文内容の要旨

Quantum Fluid Phases of Helium confined in One-Dimensional Pores a Few Nanometers in Diameter

(直径数ナノメートル以下の
1次元細孔中ヘリウム量子流体)

氏名 谷口 淳子

ヘリウム単原子分子は、ボゾンである ^4He とフェルミオンである ^3He の同位体が安定して存在する。これらは大きなゼロ点エネルギーのため絶対ゼロ度まで液体のままにあることが可能であり、量子統計性の違いを反映した量子流体の最適な研究対象である。バルク液体では、3次元 ^4He ボースおよび ^3He フェルミ液体が研究され、更に平らな基盤に吸着したヘリウムでは、次元性と密度によって相互作用も制御された2次元の量子液体が実現して、バルクとは異なるさまざまな性質が明らかになっている。さらに次元性を1次元にした場合の量子流体についても興味もたれるが、これまでのところ1次元He量子系の実現に成功した研究は皆無といえる。そこで我々は、1次元 ^4He と ^3He の量子流体の実現を目的として、孔径がナノメートルサイズの細い1次元細孔中に ^4He 、 ^3He を吸着させた系の量子的性質を調べる研究を行った。

研究には孔径が18 Åと28 Åで長さ数千 Å程度のまっすぐな1次元トンネルを持つ2種類のメゾ多孔体(FSM-16)を用いた。これらの新規吸着基盤では、これまでHe吸着の実験がなかったので、まずその吸着状態を調べる必要があった。そこで我々は、主に ^4He 、 ^3He の吸着圧力測定から、吸着エネルギーや層形成などを調べる手法を確立し、細孔中でHe原子が細孔壁を1層で覆う吸着量(n_1)や、一様な層を作って吸着する最大の量(n_f)を明らかにした。 ^4He の場合、18 Åの細孔では $n_f=1.4n_1$ 、孔径28 Åでは $2n_1$ まで細孔壁面に一様な層を作って吸着する。 ^3He の場合、小さい質量のためゼロ点振動が大きくなり、 n_1 や n_f は低密度側にずれる。

吸着 ^4He や ^3He がそれぞれの量子統計性を反映したボースおよびフェルミ流体になっているかどうかは、数十mKまでの低温比熱で定性的に異なった振る舞いを示すかどうかで評価した。図1は孔径28Åで吸着面積が $S=85\text{m}^2$ の細孔基盤に吸着した ^4He および ^3He の等温比熱をしめす。 ^4He の比熱は $1.4n_1$ まで、吸着量の増加とともに増加するが、それ以降、減少に転じる。一方、 ^3He は $1.4n_1$ 以降も比熱は増加を続けており、 ^4He と ^3He の違いが明瞭に現れている。従って、吸着量が $1.4n_1$ 以降で量子流体相が出現していると示唆される。

^4He ボース流体では、2次元と3次元において超流動が観測されている。1次元細孔に吸着した ^4He についても、共同研究者がねじれ振子の実験で超流動を検証した。その結果28Å細孔基盤では、吸着量が $1.4n_1$ 以上で超流動を観測した。従ってこの吸着量領域では、細孔中に確実に ^4He ボース流体が実現している。

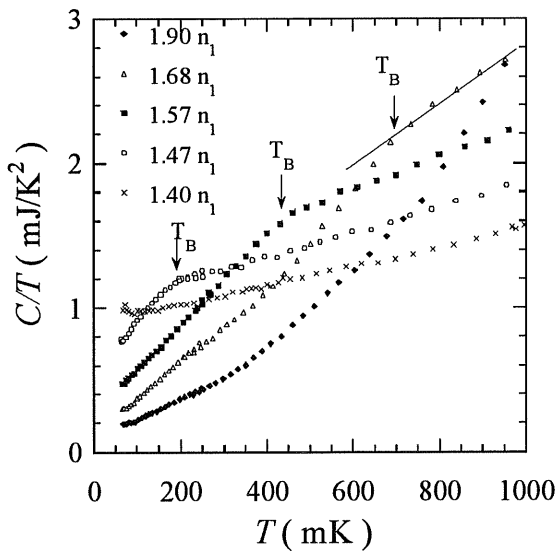


図 2: 28Å細孔中 ^4He の $n > 1.4n_1$ における C/T の温度依存。

図2は、ボース流体が存在する吸着量における比熱 C の温度依存を、 C/T に対してプロットしている。各吸着量では、 T_B と標した温度で明らかに温度依存が異なる。ねじれ振子の実験では、 T_B とほぼ同じか少し低温側で超流動が観測されており、 T_B と超流動のオンセット温度との関連が示唆される。 T_B より低温での比熱の温度依存は、 T がゼロの極限で C/T が有限値に漸近しており、十分低温で比熱は温度 T に比例すると考えられる。

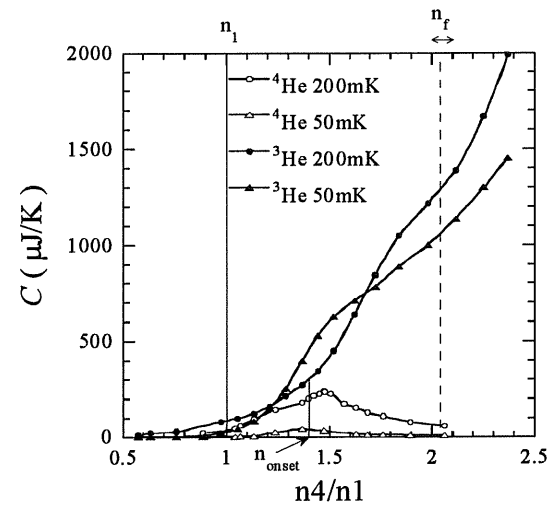


図 1: 28Å細孔中の ^3He と ^4He の比熱等温曲線。

^4He ボース流体における素励起はフォノン的な分散を持つと考えられる。28細孔で実現した ^4He 量子流体は、 $1.4n_1$ の局在層(膜厚がおよそ5.5Å)の上に吸着しているので、直径 d が17Åの円筒壁面に吸着した ^4He 薄膜がボース流体になっている。このボース流体の音速をバルク ^4He と同じ程度の200m/secとすると、円周方向は離散的なエネルギー準位をもち、基底状態から第一励起状態へのギャップエネルギーは、 $h v / \pi d = 1.7\text{K}$ と見積もられる。このため数十mK程度の低温では円周方向の運動は基底状態にあり、1次元細孔に沿ったフォノンしか励起しない。従って、図2

図2は、ボース流体が存在する吸着量における比熱 C の温度依存を、 C/T に対してプロットしている。各吸着量では、 T_B と標した温度で明らかに温度依存が異なる。ねじれ振子の実験では、 T_B とほぼ同じか少し低温側で超流動が観測されており、 T_B と超流動のオンセット温度との関連が示唆される。 T_B より低温での比熱の温度依存は、 T がゼロの極限で C/T が有限値に漸近しており、十分低温で比熱は温度 T に比例すると考えられる。

^4He ボース流体における素励起はフォノン的な分散を持つと考えられる。28細孔で実現した ^4He 量子流体は、 $1.4n_1$ の局在層(膜厚がおよそ5.5Å)の上に吸着しているので、直径 d が17Åの円筒壁面に吸着した ^4He 薄膜がボース流体になっている。このボース流体の音速をバルク ^4He と同じ程度の200m/secとすると、円周方向は離散的なエネルギー準位をもち、基底状態から第一励起状態へのギャップエネルギーは、 $h v / \pi d = 1.7\text{K}$ と見積もられる。このため数十mK程度の低温では円周方向の運動は基底状態にあり、1次元細孔に沿ったフォノンしか励起しない。従って、図2

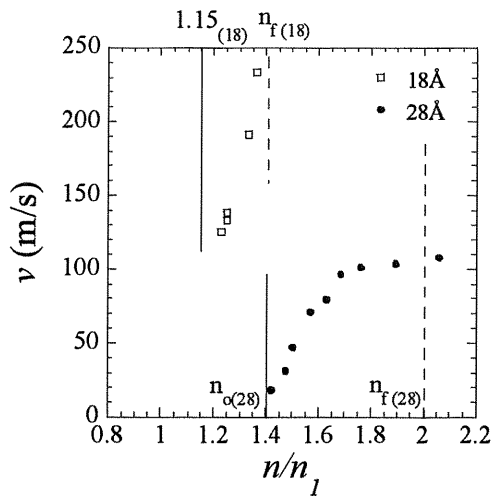


図 3 : 比熱から求めたフォノン音速の比較 (18 Å 細孔 v.s. 28 Å 細孔)。

において超流動は、 $n_f=1.4n_1$ まで観測されなかった。これらの結果から、18 Åの細孔中 ^4He については、 n_f まで固相の寄与が大きい可能性が考えられる。1.15 n_1 から1.4 n_1 の吸着量での超流動の有無は、超音波などの異なった方法で行う必要がある。また、次元性とボーズアインシュタイン凝縮の関係を実験的に検証するにはより詳細な細孔径依存を調べる必要がある。

次に、1次元細孔中で、量子統計性を示す ^3He のフェルミ流体が、更に低温でフェルミ縮退して温度に比例した比熱、 $C=\gamma T$ 、を観測するために、5mKまでの超低温比熱を測定した。細孔にヘリウムを吸着させると、局在した固体のヘリウム層の上に吸着した ^3He や ^4He が量子流体になると考えられる。 ^3He のみを吸着した場合には、100mK程度以下で温度を下げると比熱が大きくなるアップターンが観測された。これは局在した固体層の ^3He の核スピンの起因する比熱である。この大きなアップターンの比熱があると、フェルミ縮退した ^3He の比熱が相対的に小さくなり、正確な測定ができなくなる。このため固体層の ^3He を核比熱のない ^4He で前もって置換した。

28 Å 細孔基盤では置換する ^4He の量を1.47 n_1 にした結果、その上に吸着した ^3He の比熱は5mKの低温までアップターンは完全に示さなくなり、図4に示すように低温でほぼ温度に比例するフェルミ縮退の比熱を観測した。 ^3He の吸着量は、1次元トンネル方向の平均粒子間距離 a_{1D} に換算した値で図中に示している。このとき ^3He は直径 $d=17\text{Å}$ の1次元細孔壁面に吸着してフェルミ縮退している。

吸着 ^3He が相互作用のない理想ガスとして振

で見られる低温比熱の温度に比例する成分は1次元フォノン比熱と考えられる。このフォノン比熱から、フォノン音速を見積もった結果が図3である。音速の大きさは流体のものとしては妥当な大きさである。これらの結果から、28 Å 細孔中に吸着させた ^4He 薄膜において、十分低温のフォノン系で1次元性が現れたと結論される。

18 Å 細孔では1.15 n_1 以上の吸着量で28 Å 細孔と同様な同位元素効果があり、量子流体の存在が示唆される。1.15 n_1 以降で1Dフォノン比熱が観測され、それから図3のようにフォノン音速が見積もられた。音速の大きさは、バルク液体の場合と同程度だが、28 Å の場合に比べて大きい。また、18 Å 中 ^4He にお

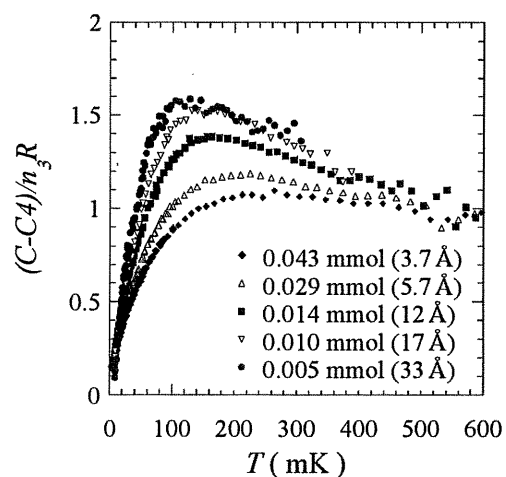


図 4: ^4He 超流動薄膜上の ^3He のモル比熱 (R で規格化している)。

舞うと仮定すると、 ^3He の円周方向の離散的運動エネルギー準位は $\hbar^2/(2m(2l/d)^2)$ と表される (m : ^3He 原子の質量、 l : 方位量子数)。円周の直径は $d=17\text{\AA}$ なので、 ^3He の基底状態と第一励起状態のエネルギーギャップ Δ は 110mK 程度となる。また 1 次元フェルミガスのフェルミ縮退温度 (T_{FID}) は $\hbar^2/(32ma_1^2)$ と与えられる。したがって、吸着量を小さくして Δ より T_{FID} が小さくなるようにし、また温度を $(\Delta-T_{\text{FID}})$ より十分に低くした場合に、理想ガスは 1 次元フェルミ縮退の条件をみたす。図4の $a_{\text{1D}}=33\text{\AA}$ に相当する最低の吸着量では $T_{\text{FID}}=18\text{mK}$ と計算されるので、フェルミ準位から第一励起準位までのエネルギーの差は $(\Delta-T_{\text{FID}})=93\text{mK}$ と計算される。実験は 5mK まで測定しているので、 ^3He が理想ガスならば 1 次元条件を十分満たしたフェルミ縮退を観測することができる。

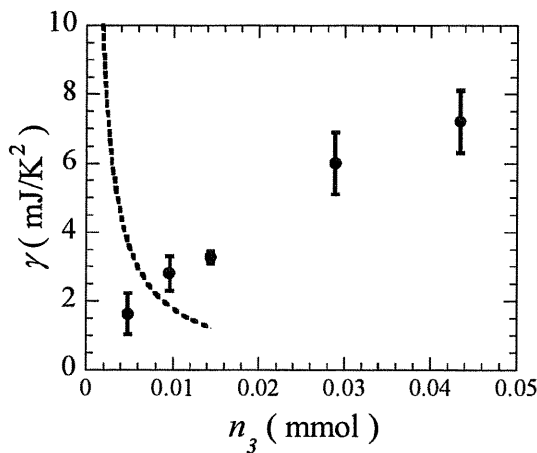


図 5: γ の吸着量変化。点線は 1 次元理想フェルミガスの γ 。

実際に観測された吸着 ^3He の比熱(図4)は、円周運動のギャップエネルギー $\Delta=110\text{mK}$ より高温で 2 次元古典ガスが期待される 400mK 程度以上では、比熱は $C/nR=1$ に近い値を持っている。温度を下げると、 $100\text{-}200\text{mK}$ あたりでは、 $1.5R$ にまで達するピークを持つ。 100mK 付近のピークの大きさは、円周方向の運動の励起による 1 次元状態から 2 次元状態へのクロスオーバーで説明することができる。さらに、 Δ より十分低い約 30mK 以下では、すべての吸着量において $C=\gamma T$ に漸近している。この比例係数 γ の吸着量変化を図5に示す。 γ は吸着量 n_3 とともに増加している。一方、相互作用がない理想ガスが 1 次元フェルミ縮退ガスの条件を満たす低い吸着量では、 γ は図5中の点線で示すように n に逆比例して大きく変化することが予想できる。しかし実際に観測された γ の n 依存は予想と全く異なる。むしろ 1 モルあたりの値 γ/n は約 $0.3\text{J/K}^2/\text{mol}$ と密度の変化にあまり依存していない。このように数 10mK 程度以下の低温では、理想ガスから期待される振る舞いではなく、何らかの相互作用を持った ^3He 量子流体のフェルミ縮退状態と考えられる。

以上のように、我々はナノメートルサイズの孔径を持った新規 1 次元細孔基盤中に ^4He と ^3He を吸着させ、それらの量子流体を実現する研究を行った。圧力測定によってヘリウムの吸着状態を調べ、細孔内の壁面に一様な層をなして吸着したヘリウムの吸着状態を明らかにし、比熱測定で固体層の上にてきた ^4He ボースおよび ^3He フェルミ量子流体層の存在を明らかにした。このうち 28\AA の 1 次元細孔基盤では、直径約 17\AA の円筒の形状をした ^4He ボース流体薄膜が 1 次元フォノン比熱を示すなどの 1 次元的特徴を明らかにした。また ^3He では、理想ガスならば 1 次元条件を満たされる希薄密度と低温で比熱測定を行い、吸着 ^3He のフェルミ縮退を示す比熱を観測した。