

Title	強電場による水素およびHDの量子液体状態の実現
Sub Title	Search for quantum liquid hydrogen and hydrogen : deuteride by strong electric field
Author	白濱, 圭也(Shirahama, Keiya)
Publisher	
Publication year	2019
Jtitle	科学研究費補助金研究成果報告書 (2018. )
JaLC DOI	
Abstract	<p>新しい物理学の発展をもたらす超流動体の創出を目的として、本研究では水素分子薄膜の超流動化を目指した。水素薄膜に強静電場を与えて流体状態を低温まで保持し、超流動化を図ることを計画した。この実験の前に水素薄膜の量子性を調べるために3種類の同位体(H<sub>2</sub>,HD,D<sub>2</sub>)薄膜の弾性測定を行い、異なる温度3箇所ですべて弾性異常(弾性率の増大と散逸の極大)を発見した。その解析から、薄膜の最表面では低温まで水素分子が流体として保持されるが1Kで固化することが初めて明らかになった。これは、固体水素の最表面が超流動寸前の状態にあることを示唆しており、水素薄膜を人工的に超流動化する手法の開発につながる重要な成果である。</p> <p>Aiming at producing novel superfluid matters that can contribute to development of physics, we studied molecular hydrogen films with emphasis on searching for methods to realize superfluidity. We have found anomalous elastic behaviors (increase in elasticity accompanied with dissipation) in three isotope films (H<sub>2</sub>, HD and D<sub>2</sub>). The anomalies show that uppermost surface of the films are maintained to be fluid state down to 1 K, suggesting that bosonic H<sub>2</sub> and D<sub>2</sub> films are on the verge of superfluid transition. Our finding provides a clue for realizing superfluidity by artificial methods.</p>
Notes	研究種目：挑戦的研究(萌芽) 研究期間：2017～2018 課題番号：17K18762 研究分野：低温物理学
Genre	Research Paper
URL	<a href="https://koara.lib.keio.ac.jp/xoonips/modules/xoonips/detail.php?koara_id=KAKEN_17K18762seika">https://koara.lib.keio.ac.jp/xoonips/modules/xoonips/detail.php?koara_id=KAKEN_17K18762seika</a>

慶應義塾大学学術情報リポジトリ(KOARA)に掲載されているコンテンツの著作権は、それぞれの著作者、学会または出版社/発行者に帰属し、その権利は著作権法によって保護されています。引用にあたっては、著作権法を遵守してご利用ください。

The copyrights of content available on the Keio Associated Repository of Academic resources (KOARA) belong to the respective authors, academic societies, or publishers/issuers, and these rights are protected by the Japanese Copyright Act. When quoting the content, please follow the Japanese copyright act.

令和元年6月11日現在

機関番号：32612

研究種目：挑戦的研究(萌芽)

研究期間：2017～2018

課題番号：17K18762

研究課題名(和文) 強電場による水素およびHDの量子液体状態の実現

研究課題名(英文) Search for Quantum Liquid Hydrogen and Hydrogen - Deuteride by Strong Electric Field

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) 5,000,000円

研究成果の概要(和文)：新しい物理学の発展をもたらす超流動体の創出を目的として、本研究では水素分子薄膜の超流動化を目指した。水素薄膜に強静電場を与えて流体状態を低温まで保持し、超流動化を図ることを計画した。この実験の前に水素薄膜の量子性を調べるために3種類の同位体(H<sub>2</sub>, HD, D<sub>2</sub>)薄膜の弾性測定を行い、異なる温度3箇所弾性異常(弾性率の増大と散逸の極大)を発見した。その解析から、薄膜の最表面では低温まで水素分子が流体として保持されるが1Kで固化することが初めて明らかになった。これは、固体水素の最表面が超流動寸前の状態にあることを示唆しており、水素薄膜を人工的に超流動化する手法の開発につながる重要な成果である。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究は、分子状水素を用いて新しい超流動体をつくる試みである。超流動と超伝導は共に現在も物理学の最先端課題として活発に研究されている。これは両者が対称性破れのような物理学の基本概念を生み出してきたからである。超伝導体は多数存在するのに対し、超流動体は極めて少ない。そのため新しい超流動体が見つければ、物理学の新しい発展をもたらすと期待される。本研究は、研究代表者の独自のアイデアで水素分子薄膜で人工的に超流動を実現することを目指す。本研究により、ボース粒子であるH<sub>2</sub>, D<sub>2</sub>の超流動だけでなく、フェルミ粒子のHDを用いた異方的トポロジカル超流動体の創出につながる可能性がある。

研究成果の概要(英文)：Aiming at producing novel superfluid matters that can contribute to development of physics, we studied molecular hydrogen films with emphasis on searching for methods to realize superfluidity. We have found anomalous elastic behaviors (increase in elasticity accompanied with dissipation) in three isotope films (H<sub>2</sub>, HD and D<sub>2</sub>). The anomalies show that uppermost surface of the films are maintained to be fluid state down to 1 K, suggesting that bosonic H<sub>2</sub> and D<sub>2</sub> films are on the verge of superfluid transition. Our finding provides a clue for realizing superfluidity by artificial methods.

研究分野：低温物理学

キーワード：低温物性 超流動 水素 非平衡 弾性

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

超流動・超伝導現象は長い研究の歴史があるにもかかわらず、現在も物理学の中心的研究課題である。これは両者が物理学の基本概念を常に生み出し続ける母体となっているためと考えられる。対称性の自発的破れ、準粒子、強相関など、現代物理学を貫く基本概念の多くは超流動・超伝導の研究から生まれた。近年物理学を席捲しているトポロジカル物質研究においても、両者の役割は重要である。すなわち超流動・超伝導はこれからも物理学の最先端に位置づけられる研究課題であり、新しい物理概念の創出に貢献し続けるだろう。

超伝導を示す物質は多数存在するが、超流動物質はそれに比べ、液体ヘリウム、冷却原子系、励起子ポラリトン系など少数に限られる。もしこれらの系以外で超流動が実現すれば、人類は新しい物理概念を生み出す母体をも一つ得ることになり、その基礎科学への貢献は計り知れない。とりわけ新しいフェルミオン超流動体の実現は、新しい超伝導体の発見と同等の価値をもつ。

水素分子( $H_2$ )はヘリウムより軽いボース粒子であるため、超流動体の候補物質として古くからボース・アインシュタイン凝縮(BEC)や超流動の可能性が議論されてきた。超伝導理論で知られるギンツブルグ(2003年ノーベル物理学賞)は、液体水素を過冷却できれば、約6KでBEC即ち超流動状態に相転移しようと提案した[1]。この提案を受けて過冷却超流動水素の実現を目的とした様々な実験(水素液滴および多孔体中水素の過冷却)が試みられたが、超流動は観測されなかった[2]。唯一水素が超流動状態を示したとされる研究(2000年)があり、そこでは微小なノズルより放出生成された $H_2$ クラスター(中心にOCN分子を囲む)が0.38Kに保持され、 $H_2$ の超流動を示唆するOCN分子の回転スペクトルが観測された[3]。この実験は物性測定の高難からその後の発展がないが、水素の少数多体系が超流動になり得ることを示した点で重要である。このことは $H_2$ 薄膜が超流動となることを示した計算機シミュレーション[4]にも反映されていると考えられる。即ち、ナノ空間や薄膜状態の水素はバルク水素に比べ、超流動になりやすいと期待される。

また、水素には安定な同位体としてフェルミ粒子の重水素化水素(HD)と重水素( $D_2$ )が存在する。HDが超低温まで液体として保持されれば、液体ヘリウムと同様に、フェルミ粒子がペアを組むことで超流動転移を起こす可能性がある。この可能性についてはこれまで全く議論すらされてこなかった。HDは異核2原子分子であり、超流動状態でのクーパーペア対称性は全く未知であるが、新しい異方的(トポロジカル)超流動が発現する可能性があり、大変興味深くチャレンジングな研究対象である。

### 2. 研究の目的

本研究では上記のアイデア、即ち水素薄膜が超流動を示す可能性を実験的に探求することを目的とする。目的達成のため、水素薄膜に金属探針により強い静電場を印加して、過冷却液体状態を低温まで保持することを試みる。この方法は、 $10^9V/m$ 程度の強電場中では液体水素が固体状態に比べて安定となり、超流動水素が実現するという理論提案[5]に基づく。バルク水素に対して強電場の印加は不可能だが、走査プローブ顕微鏡の探針・表面間では実現可能である。また上述のように水素薄膜はそれ自身が超流動になりやすい可能性をもつ。そこで、移動可能な金属探針を金属基盤上に設置したプローブ顕微鏡様の実験装置を開発し、基盤上に水素を数原子層吸着させた後に探針を近づけて電場印加により水素を融解させる実験を計画した。

### 3. 研究の方法

本研究では強電場下の水素薄膜の実験を行うのに先だって、ガラス基盤に吸着した $H_2$ 、HD、 $D_2$ 薄膜の弾性測定を行った。この研究は、同じ基盤上のヘリウム( $^4He$ および $^3He$ )薄膜、およびネオン( $^{20}Ne$ )薄膜で発見された、「弾性異常」の研究成果に基づくものである(雑誌論文1,2)。 $^4He$ 薄膜はその吸着量 $n$ が臨界値 $n_c$ 以下では原子が基盤上に局在し超流動を示さないが、 $n_c$ を超えると量子相転移を示し超流動になる。我々はねじれ振動子の手法を用いて局在相が存在する基盤の弾性を測定したところ、弾性率が低温で増大し、同時に散逸のピークを伴う異常を発見した。この現象を弾性異常と名付けた。弾性異常から吸着薄膜の圧縮率を求めることに成功し、 $^4He$ と $^3He$ 薄膜の両方が $n_c$ 以下の非超流動状態ではモット絶縁体的なエネルギーギャップを持つ局在状態であることを明らかにした。また、量子性の小さいネオン薄膜でも弾性異常を発見したが、ヘリウムと異なりネオン薄膜は超流動量子相転移を示さず、いわば古典系としての性質を示すことも判明した。

水素はヘリウムとネオンの中間的量子性を有すると考えられるため、本研究で当初考えた電場を印加しなくても、ヘリウムと同様の量子相転移を示せば、少なくともボース粒子の $H_2$ 、 $D_2$ は超流動を示す可能性がある。そこで当初の研究計画を変更して、水素同位体薄膜の弾性測定を行い、超流動の可能性を調べた。実験手法はヘリウムとネオン薄膜のそれと同様に、多孔質ガラスをねじれ振動子のねじれロッド部分に挿入し、細孔中に物理吸着により作成した薄膜を有するガラスの弾性率を0.1Kから20Kの広い温度範囲で測定した。

### 4. 研究成果

実験の結果、 $H_2$ 、 $D_2$ 、HDの同位体薄膜全てにおいて、定性的には同様の弾性異常を発見した。しかしヘリウムとネオンの弾性異常が単一の温度で一つだけ生じたのとは異なり、驚くべきことに水素薄膜では吸着量の増加につれて、図(a)に示すように弾性異常が3つに分裂して起こることが明らかになった。またHD薄膜のみ、上記の3つの異常の他に、1K付近でもう一つの弾

性異常が見つかり、そこでは低温側で弾性率が低下するという「逆」の異常が観測された。

弾性異常が生じる温度を、散逸がピークを持つ温度をプロットすることで示したのが図である。3つに分裂する振る舞いは3種類の同位体薄膜で全て同じであった。バルク固体水素および水素薄膜の過去の研究との対応から、この3種類の異常は、最高温のそれが固体水素中の空孔の古典的熱拡散(温度  $T_{p1}$ )の凍結、中間温度( $T_{p2}$ )のは量子トンネリングによる量子拡散の凍結、そして最低温( $T_{p3}$ )の異常は水素薄膜際表面での分子拡散の凍結に起因すると解釈した。3種類の異常のうち前2者はバルク固体水素にも共通する性質だが、最後の表面拡散は薄膜のみが有する性質である。この結果より、水素薄膜の最表面にはバルク三重点(約 15K)の 1/10 以下の 1K まで過冷却流体層が存在するが、0K に到達する前に 1K で固化してしまい、ヘリウム薄膜のように量子相転移を示さないことが明らかになった。以上の結果は論文投稿を準備中である。

これらの結果は、水素薄膜の最表面は超流動の寸前まで流体として保持されるが、超流動を起こす前に固化してしまうことを示す、極めて示唆に富む成果である。まず当初計画のように強電場を水素薄膜に印加すると、薄膜の最表面では電場による表面融解が促進され、絶対零度まで水素流体が保持される可能性がある。また、最表面での分子拡散を促進させるような操作を行えば、非平衡ではあるが超流動を起こせるかもしれない。具体的には、弾性異常が薄膜分子の熱活性化励起により起こることから、薄膜に励起エネルギー(ギャップ)程度のフォノン照射すれば、分子を励起状態で拡散させて超流動状態が生成できる可能性がある。このような新しい非平衡超流動状態の観測をめざして、研究を展開する目途が立った。

また弾性異常の温度が、3種類の同位体で殆ど変わらないことも明らかになった。このことは、 $H_2$  より重い  $HD$  や  $D_2$  においても、人工的に超流動を実現しうることを意味しており、当初の目標であるフェルミオン超流動  $HD$  の実現に向けた第一歩を踏み出せたと考えている。

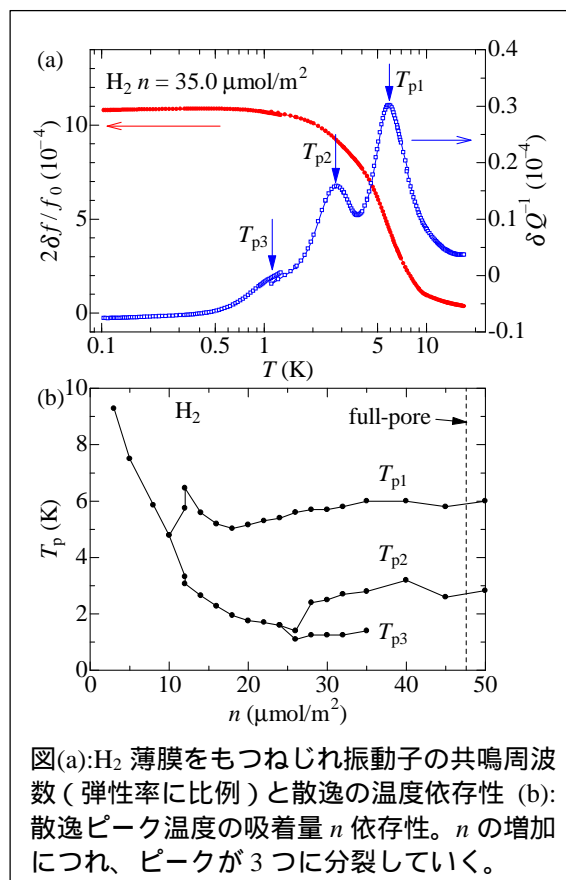
以上をまとめると、当初計画の前段階において、水素薄膜では固有の分子拡散過程が存在するが、そのうち薄膜最表面の分子拡散は超流動を示す直前で固化するという結果を得た。本研究期間はこの性質の解明に時間を要し、当初予定の電場印加実験は装置準備の段階に留まっているが、水素の超流動状態実現に向けて大きく前進する、重要な手がかりを得ることができた。今後は水素薄膜の超流動状態を人工的につくる研究を、本格的に展開していきたい。

[1] V. L. Ginzburg and A.A. Sobyanyin, JETP Lett. **15**, 343 (1972). [2] R. H. Torii *et al.*, Phys. Rev. **B 41**, 7167 (1990). [3] S. Grebenov *et al.*, Science **289**, 1532 (2000). [4] M. C. Gordillo and D. M. Ceperley, Phys. Rev. Lett. **79**, 3010 (1997). [5] V. S. Vorobeve and A. P. Malysenko, JETP Lett. **71**, 39 (2000).

## 5 . 主な発表論文等

[雑誌論文](計 7 件)

1. Takahiko Makiuchi, Katsuyuki Yamashita, Michihiro Tagai, Yusuke Nago and Keiya Shirahama, "Elastic Anomaly of Thin Neon Film", Journal of the Physical Society of Japan **88** 034601 (2019) 査読有り
2. T. Makiuchi, M. Tagai, Y. Nago, D. Takahashi, and K. Shirahama, "Elastic anomaly of helium films at a quantum phase transition", Physical Review **B 98** 235104 (2018) 査読有り
3. J. Choi, T. Tsuiki, D. Takahashi, H. Choi, K. Kono, K. Shirahama, and E. Kim, "Reinvestigation of the rotation effect in solid  $^4\text{He}$  with a rigid torsional oscillator", Physical Review **B 98** 014509 (2018). 査読有り
4. T. Tsuiki, D. Takahashi, S. Murakawa, Y. Okuda, K. Kono, K. Shirahama, "Effect of rotation on the elastic moduli of solid  $^4\text{He}$ ", Physical Review **B**, 054516 (2018). 査読有り
5. Takahiko Makiuchi, Satoshi Murakawa, Keiya Shirahama, "A Compact Rotating 1K Cryostat for Helium 4 Studies", Journal of Low Temperature Physics **187**, 633–638 (2017). 査読有り
6. Kobayashi, Amane, Sekiguchi, Yuki, Takayama, Yuki, Oroguchi, Tomotaka, Shirahama, Keiya, Torizuka, Yasufumi, Manoda, Masahiro, Nakasako, Masayoshi, Yamamoto, Masaki, "TAKASAGO-6 apparatus for cryogenic coherent X-ray diffraction imaging of biological non-crystalline particles using X-ray free electron laser at SACLA", REVIEW OF SCIENTIFIC INSTRUMENTS, **87**, 5 (2016). 査読有り
7. Shin, Jaeho, Choi, Jaewon, Shirahama, Keiya, Kim, Eunseong "Simultaneous investigation of shear



図(a):  $H_2$  薄膜をもつねじれ振動子の共鳴周波数(弾性率に比例)と散逸の温度依存性 (b): 散逸ピーク温度の吸着量  $n$  依存性。  $n$  の増加につれ、ピークが3つに分裂していく。

〔学会発表〕(計 24 件)

1. 巻内崇彦, 山下勝之, 互井通裕, 永合祐輔, 白濱圭也 「吸着薄膜における弾性異常」日本物理学会 第 74 回年次大会 九州大学(福岡市) 2019 年 3 月 14-17 日
2. 永合祐輔, 三吉佑典, 石黒亮輔, 白濱圭也 「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」日本物理学会 第 74 回年次大会 九州大学(福岡市) 2019 年 3 月 14-17 日
3. Takahiko Makiuchi, Katsuyuki Yamashita, Michihiro Tagai, Yusuke Nago, Keiya Shirahama “Elastic Anomaly of Helium, Hydrogen and Neon Films on Disordered Substrate” APS March Meeting 2019, March 7, 2019, Boston, Massachusetts
4. Keiya Shirahama “Elastic Anomalies in Adsorbed Films of Helium, Hydrogen and Neon” International Symposium on Quantum Fluids and Solids (QFS2018), July 26, Tokyo, (招待講演)
5. K. Yamashita, T. Makiuchi, M. Tagai, Y. Nago, and K. Shirahama “Elasticity Measurements of Hydrogen Films Adsorbed on a Porous Glass” International Symposium on Quantum Fluids and Solids (QFS2018), July 26 2018, Tokyo
6. T. Makiuchi, M. Tagai, K. Yamashita, Y. Nago, D. Takahashi, and K. Shirahama “Quantum Phase Transition of Thin He Films on a Disordered Substrate” International Symposium on Quantum Fluids and Solids (QFS2018), July 26 2018, Tokyo,
7. K. Kuwahara, T. Shimoda, T. Terabayashi, M. Mukaida, T. Makiuchi, Y. Nago, J. Yan, and K. Shirahama “Toward the direct observation of chiral edge mass current in quasi-2D 3He-A” International Symposium on Quantum Fluids and Solids (QFS2018), July 26 2018, Tokyo
8. T. Makiuchi, K. Yamashita, M. Tagai, Y. Nago, and K. Shirahama “Elasticity Measurements of Neon Films on a Porous Glass Substrate” International Symposium on Quantum Fluids and Solids (QFS2018), July 26 2018, Tokyo
9. T. Tani, S. Murakawa, R. Wada, K. Kaiya, K. Yamada, K. Itoh, Y. Mita, and K. Shirahama “Fabrication of Micro-slit Structures for Studies of Topological Properties of Quasi-two Dimensional Superfluid 3He” International Symposium on Quantum Fluids and Solids (QFS2018), July 26 2018, Tokyo
10. Y. Nago, Y. Morikawa, Y. Tanaka, K. Kato, T. Takagi, H. Maki, S. Murakawa, and K. Shirahama “Nanomechanical Wire Resonator for Probing Quantum Vortex in Superfluid He” International Symposium on Quantum Fluids and Solids (QFS2018), July 26 2018, Tokyo
11. 檜枝光憲, 立木智也, 高橋大輔, 白濱圭也, 奥田雄一, 河野公俊, 松下琢, 和田信雄, 「バルク液体 4He の横音響インピーダンス測定」日本物理学会第 73 回年次大会、東京理科大学(野田市) 2018 年 3 月 25 日
12. 巻内崇彦, 山下勝之, 互井通裕, 永合祐輔, 高橋大輔, 白濱圭也, 「多孔質ガラスに吸着したネオン薄膜の弾性測定」日本物理学会第 73 回年次大会、東京理科大学(野田市) 2018 年 3 月 25 日
13. 白濱圭也, “Quantum phase transition of thin helium films probed by elastic measurement”, The International Workshop on Electrons and Ions in Quantum Fluids and Solids, 2018 年 3 月 11-14 日、東レ研修センター(三島市) (ポスター発表)
14. 白濱圭也, “Toward the direct observation of chiral edge mass current in quasi-2D 3He-A”, The International Workshop on Electrons and Ions in Quantum Fluids and Solids, 2018 年 3 月 11-14 日、東レ研修センター(三島市) (ポスター発表)
15. 白濱圭也, “Microfabrication of multiple slit structures for studies of topological superfluid 3He”, The International Workshop on Electrons and Ions in Quantum Fluids and Solids, 2018 年 3 月 11-14 日、東レ研修センター(三島市) (ポスター発表)
16. 白濱圭也, “Nanomechanical Resonator based on Carbon Nanotube for Study of Superfluid He”, The International Workshop on Electrons and Ions in Quantum Fluids and Solids, 2018 年 3 月 11-14 日、東レ研修センター(三島市) (ポスター発表)
17. 檜枝光憲, 滝沢亮人, 立木智也, 高橋大輔, 白濱圭也, 奥田雄一, 河野公俊, 松下琢, 和田信雄, 「QCM 測定における 2 次元およびバルク 4He の回転効果」日本物理学会 2017 年秋季大会、岩手大学(盛岡市) 2017 年 9 月 23 日
18. 永合祐輔, 田中悠, 高木将, 谷川俊太郎, 大里啓孝, 津谷大樹, 牧英之, 村川智, 白濱圭也, 「超流動流れ場検出のための架橋ナノワイヤー共振器の開発」日本物理学会 2017 年秋季大会、岩手大学(盛岡市) 2017 年 9 月 23 日
19. 巻内崇彦, 互井通裕, 永合祐輔, 白濱圭也, 「ヘリウム薄膜の局在非局在転移における臨界現象」日本物理学会 2017 年秋季大会、岩手大学(盛岡市) 2017 年 9 月 23 日
20. Takahiko Makiuchi, Michihiro Tagai, Yusuke Nago, Keiya Shirahama, “Gapped bosonic and fermionic insulators of helium films”, International Conference on Ultra Low Temperature Physics, Heidelberg University (Germany), August, 17 - 21, 2017
21. Y. Nago, Y. Tanaka, T. Takagi, S. Tanigawa, H. Osato, D. Tsuya, H. Maki, S. Murakawa, K. Shirahama, “Nanomechanical Resonator based on Carbon Nanotube for Study of Superfluid He”, International Conference on Ultra Low Temperature Physics, Heidelberg University (Germany), August, 17 - 21, 2017

22. T. Tani, R. Wada, K. Kaiya, S. Murakawa, Y. Nago, Y. Mita, K. Shirahama, “Microfabrication of Multi-Slit Structures for Studies of Topological Properties of Quasi-2 Dimensional Superfluid  $^3\text{He}$ ”, 28th International Conference on Low Temperature Physics, Gothenburg (Sweden) August 9-16 2017
23. T. Tani, R. Wada, S. Murakawa, Y. Nago, K. Shirahama, “Flow Properties of Superfluid  $^4\text{He}$  in Nanoporous Media Probed by Helmholtz Resonator”, 28th International Conference on Low Temperature Physics, Gothenburg (Sweden), August 9-16 2017
24. T. Makiuchi, M. Takai, Y. Nago, K. Shirahama, “Stiffening of the gapped helium insulator”, 28th International Conference on Low Temperature Physics, Gothenburg (Sweden), August 9-16 2017

## 6 . 研究組織

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。