

学位論文 博士（理学）

ナノ多孔体中ヘリウム 4 の超流動転移における
4 次元 XY 量子臨界性

2021 年度

慶應義塾大学大学院理工学研究科

谷 智行

目次

第 1 章 序論	1
1.1 バルク超流動ヘリウム	3
1.2 臨界速度、位相スリップと Josephson 効果	10
1.3 普遍性クラスと制限空間中超流動	15
1.4 不均一構造中の臨界現象と Harris の基準	17
第 2 章 ナノ多孔体中ヘリウム 4 と量子相転移	19
2.1 量子相転移	19
2.2 経路積分	20
2.3 動的臨界指数	22
2.4 3 次元超流動ヘリウム 4 における量子相転移	24
2.5 Bose-Hubbard 模型と 4 次元 XY 普遍性	30
2.6 本研究の目的	32
第 3 章 Helmholtz 共振器の原理と製作	34
3.1 実験の概要	34
3.2 Gelsil 試料の前処置と細孔分布評価	36
3.3 実験装置の製作	37
3.4 実験原理 : Helmholtz 共鳴	43
3.5 実験方法	49
第 4 章 実験結果	53
4.1 連成振動基本モード R_2 の共鳴周波数 f_2	53
4.2 最低次モード R_1	56
4.3 R_2 モードの散逸 Q^{-1}	58
4.4 R_2 モードの振幅と超流動速度	61
4.5 共振器の圧力とバルク液体ヘリウム 4 の粘性散逸	64
4.6 試料 A と試料 B の解析について	66
第 5 章 臨界指数の評価と 4 次元 XY 臨界性	68
5.1 超流動臨界指数の決定	68
5.2 多孔体中ヘリウム 4 の有限サイズ効果	72
5.3 量子揺らぎのエネルギースケール	74
5.4 相関長と量子揺らぎのスケール	75
5.5 局在 BEC 状態と超流動転移	76

5.6 相図と臨界圧力	79
5.7 超流動密度のスケーリング	81
第 6 章 散逸異常と超流動転移	85
6.1 全温度域の散逸の温度変化	85
6.2 共振器のエネルギー	87
6.3 超流動転移温度以下の散逸：超流動流による散逸の減少	88
6.4 超流動転移に伴う散逸異常：局在 BEC の位相整合	90
第 7 章 結論	98
補遺 A 無冷媒ヘリウム 3 冷凍機	102
A.1 無冷媒ヘリウム 3 冷凍機の構成と運転	102
A.2 製作した各機構の特徴と機能	105
補遺 B R_2 モードの第二音波との結合	112
B.1 第二音波の定在波との結合	112
B.2 有限要素法解析による第二音波の定在波モードの同定	112
補遺 C R_3 モードの共鳴特性	117
補遺 D Vycor ガラスによる Helmholtz 共鳴の予備実験	120
補遺 E 1 次元ナノ多孔体 FSM 中ヘリウム 4 の Helmholtz 共鳴実験	122
E.1 背景	122
E.2 実験準備	124
E.3 実験結果	124
E.4 結論と課題	129
補遺 F トポロジカル超流動ヘリウム 3 の研究に向けた マイクロスリットの作成とヘリウム 4 の流れ実験	132
F.1 超流動ヘリウム 3	133
F.2 マイクロ空間中の擬 2 次元超流動ヘリウム 3	136
F.3 マイクロスリット構造の作成	137
F.4 ヘリウム 4 の流れ実験の方法	143
F.5 マイクロスリット中ヘリウム 4 流れ実験の結果	148
F.6 まとめと展望	151
補遺 G 実験装置の設計図	153
参考文献	162
謝辞	168

第 1 章 序論

相転移に伴って現れる秩序状態の解明は、物性物理学の最も基本的で重要な研究対象である。特に絶対零度において現れる量子相転移は、通常の有限温度の相転移が熱揺らぎによって駆動されるのに対して、系に特徴的な量子力学的な不確定性に起因する量子揺らぎによって駆動される新奇な相転移である。そこでは、磁場や圧力のような温度ではない制御パラメータを変化させることで相転移が起こり、その相転移点を量子臨界点 (Quantum Critical Point, QCP) と呼ぶ。量子相転移の新奇性は絶対零度に留まらず、有限温度においても量子臨界点近傍では量子揺らぎが顕著に存在し、新奇な基底状態や低エネルギー励起の存在が期待される。これらの量子臨界現象の探索と強相関係量子多体系の物理の解明が現代の物性物理学における大きな研究対象となっている。[1, 2]

重い Fermi 粒子系における量子臨界点の存在は、量子臨界領域における非 Fermi 液体性や超伝導と磁気秩序が相図上で隣接して出現するなど、様々な新奇物性を引き起こしており、特に関心を持って研究がなされてきた [3, 4]。しかしながら Fermi 粒子系は高い自由度を持つため相図に見られるように系は極めて複雑であり、そのため量子相転移そのものの性質を調べるのは困難である。一方で Bose 粒子系である超流動ヘリウムは自由度が低く、また不純物を含まない清浄な系であるため、相転移や秩序状態の研究において理想的な舞台であると言える。

液体ヘリウム 4 はもともと量子性が強く、制限空間への閉じ込めや低次元系において量子相転移を示す。2次元超流動ヘリウム 4 では吸着量を変えることで量子相転移が実現されており [5]、理論的には Bose-Hubbard モデルに基づいて議論されている [6]。近年、ナノメートルサイズの孔径を持つ多孔体 Gelsil ガラス中において加圧下の液体ヘリウム 4 が量子相転移を示すことが実験的に明らかになった [7]。また 1次元的なナノサイズの流路を持つ多孔体中においては 1次元超流動として量子相転移を示し、朝永-Luttinger 液体性を示すと考えられている [8, 9]。

超流動ヘリウム 4 は低温で実効的に粘性を失った液体として振る舞う超流動現象を示す。これは超伝導や冷却原子系の超流動と対応する現象であり、Bose-Einstein 凝縮に起因する。超流動相はゲージ対称性が破れた秩序状態であり、複素数の秩序変数を持つ。このことを反映してバルク液体ヘリウム 4 は 3次元 XY モデルの普遍性クラス (universality class) に属している。この秩序状態が制限空間への閉じ込めによってどのように変化するかが調べられてきた。特に平均孔径 7 nm の細孔を持つ多孔体 Vycor ガラス中のヘリウム 4 の物性は良く調べられており、超流動転移温度はバルク転移より低温に抑制されるものの、臨界挙動を含めてバルク超流動ヘリウム 4 とは大きくは異なる。一方で平均孔径 2-3 nm という更に小さな孔径を持つナノ多孔体 Gelsil

ガラス中では液体ヘリウム 4 の超流動性は大きく変更を受ける。超流動転移温度は圧力上昇によって低温に抑制され、臨界圧力 $P_c(T = 0) = 3.3 \text{ MPa}$ において絶対零度に至る。すなわち圧力を変えることで量子相転移が生じている。高温側の相は単なる常流動相ではなく、非自明な非超流動状態が実現している。ここでは Gelsil の細孔分布の不均一性を反映して、孔径が大きな場所に局所的に超流動状態が発達し、それらが細孔の細い場所で分断されて孤立していると考えられている。これらの分断された Bose 凝縮体の間には超流動の位相の相関が存在せず、巨視的な超流動性が失われている。このような描像から、この非超流動状態は局在 BEC 状態と名付けられている。

Eggel らは不均一性を取り入れた Bose-Hubbard モデルによって Gelsil 中ヘリウム 4 の量子相転移を理論的に議論している [10, 11]。彼らは Gelsil 中ヘリウム 4 の超流動転移が絶対零度において 4 次元 XY の量子臨界性を示すことを見出した。量子相転移系の臨界挙動は空間次元を d 、動的臨界指数を z とするとき、 $d + z$ 次元の古典系の臨界挙動として記述できる場合がある。Gelsil 中ヘリウム 4 の場合ではこの動的臨界指数が $z = 1$ である。彼らの理論は Yamamoto らが捻れ振動子を用いて測定した Gelsil 中超流動密度を絶対零度に外挿した値 $\rho_s(T = 0)$ が、4 次元 XY として期待される $\rho_s(P, T = 0) \propto P_c(0) - P$ の臨界挙動で良く記述できることを示した。また超流動相と局在 BEC 状態の間の相境界線は $P_c(0) - P_c(T) \propto T^{1/z\nu}$ (ν は相関長の臨界指数) と書けるが、彼らは Yamamoto らの実験結果が $P_c(0) - P_c(T) \propto T^{2.13}$ と表せることを示した。この指数 2.13 もやはり 4 次元 XY で期待される指数 $1/z\nu = 2$ と良く一致する結果であった。

一般に量子相転移系であっても、有限温度の相転移点では熱揺らぎが急激に成長して、熱的な相転移となる。そこでは臨界挙動は古典的な相転移と同じ臨界性を持つと考えられている [12]。すなわち、Gelsil 中ヘリウム 4 の場合には 3 次元 XY の臨界挙動を示すはずであるが、Eggel らの議論では有限温度の相境界線も全温度域において 4 次元 XY の臨界指数で記述されている。この不一致の起源を明らかにするため、本研究では Helmholtz 共振器を用いて有限温度の相転移点における Gelsil 中ヘリウム 4 の臨界挙動と超流動の流れの特性を実験的に調査する。それによって Gelsil 中ヘリウム 4 の量子相転移の性質を明らかにし、局在 BEC 状態の起源と超流動転移の機構を解明することを目指す。

本章ではまず超流動ヘリウム 4 の基本的な性質を説明し、2 章で量子相転移の議論と、先行研究として現在までに分かっている Gelsil 中ヘリウム 4 の超流動物性を紹介する。第 3 章では実験装置の機構と製作、実験方法を説明し、第 4 章では実験結果を概説する。これらの結果を受けて第 5 章では超流動密度の臨界指数と 4 次元 XY の量子臨界性について議論し、第 6 章では超流動転移に伴って観測された散逸異常から局在 BEC 状態と超流動相の間の相転移の機構を議論する。

1.1 バルク超流動ヘリウム

ヘリウム 4 の超流動

^4He 原子は Bose 粒子であり、低温において Bose-Einstein 凝縮を起こすことで超流動性を発現する。超流動相では、ヘリウム 4 は低温に向かって粘性とエントロピーを徐々に失う。この性質は Bose-Einstein 凝縮系に特有の、巨視的なスケールで系が同一の量子状態を獲得するという概念によって説明される。超伝導現象は Fermi 粒子系の超流動現象として理解でき、BCS(Barden Cooper Schrieffer) 理論に基づいて金属中の電子が Cooper 対を組んで対凝縮することで超流動性を示す [13]。 ^4He 原子の同位体である ^3He 原子は Fermi 粒子であり、同様に ^3He 準粒子が Cooper 対凝縮することによって超流動性を示すが、複雑な内部自由度を反映して異方的超流動と呼ばれる複雑な超流動性を示す。これらは本質的には Bose-Einstein 凝縮を基礎としており、これらが示す物理現象は対応付けて理解することができる。

図 1.1 にヘリウム 4 の相図を示す。ヘリウム 4 は飽和蒸気圧下 4.2 K で液化し、そのまま絶対零度まで液体として存在する。固相は高圧下でのみ存在し、そのため三重点を持たない。液体ヘリウム 4 は低温で更に超流動相 (ヘリウム II) に相転移するが、その相境界線は λ 線と呼ばれ、超流動転移温度 T_λ は飽和蒸気圧下では 2.17 K である。

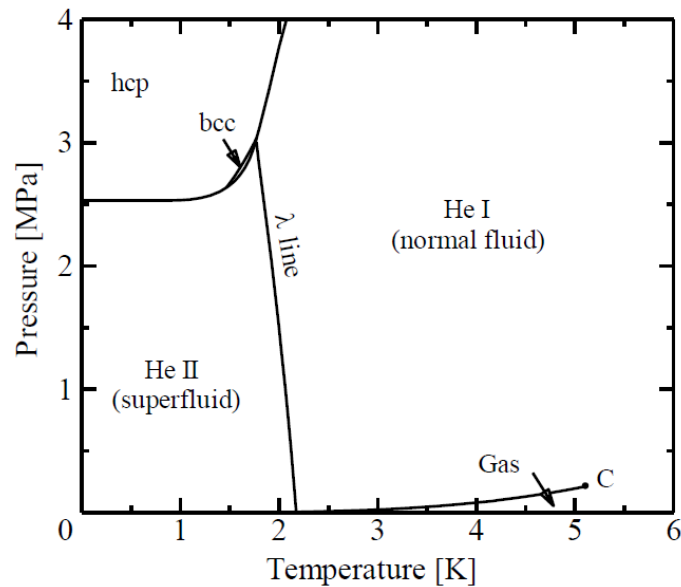


図 1.1. ヘリウム 4(左図) の相図。いずれも λ 線で超流動相に相転移し、絶対零度まで液体として存在する。固相は高圧下でのみ存在し、この圧力域では hcp 状態と bcc 状態が存在する。He I と He II はそれぞれ常流動相と超流動相を指す。気液転移の臨界点はおよそ 0.2 MPa、5.2 K に存在し、気相は低圧に限られる。

λ 点より高温の液体ヘリウム 4 は常流動 (ヘリウム I) と呼ばれ、古典的な液体として振舞う。

二流体模型

有限温度の超流動ヘリウムは単純な完全流体ではなく、現象論的には粘性を持たずエントロピーを担わない超流動成分と、粘性を持ちエントロピーを運搬する常流動成分の 2 つの成分が完全に浸透し合った混合流体として記述される (L. Tisza の二流体模型)。液体ヘリウムの全密度 ρ と全運動量密度 \mathbf{j} は超流動成分と常流動成分の密度 ρ_s 、 ρ_n と流速 \mathbf{v}_s 、 \mathbf{v}_n で記述され、常流動成分と超流動成分は独立に運動すると考える。

$$\rho = \rho_s + \rho_n \quad (1.1)$$

$$\mathbf{j} = \rho_s \mathbf{v}_s + \rho_n \mathbf{v}_n \quad (1.2)$$

図 1.2 に示すように超流動密度は超流動転移温度 T_λ から低温に向かって成長し、常流動密度は対応して減少していく。 T_λ で常流動液体となり、絶対零度で完全な超流動となる。

超流動ヘリウムの基本的な流体力学的特性は、連続の式、Euler 方程式とエントロピーの連続の式で記述できる。

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = -\nabla \cdot \mathbf{j} \quad (1.3)$$

$$\frac{\partial \mathbf{j}}{\partial t} + \rho(\mathbf{v} \cdot \nabla)\mathbf{v} = -\nabla p \quad (1.4)$$

$$\frac{\partial(\rho\sigma)}{\partial t} = -\nabla \cdot (\rho\sigma\mathbf{v}_n) \quad (1.5)$$

ここで p は圧力、 σ は単位質量あたりのエントロピーである。また超流動速度の運動

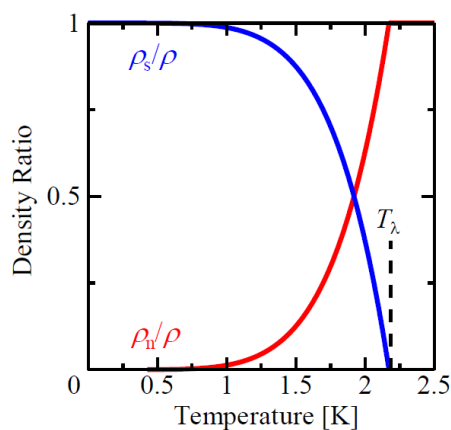


図 1.2. 常圧下の超流動ヘリウム 4 における超流動成分と常流動成分の密度比の温度依存性。

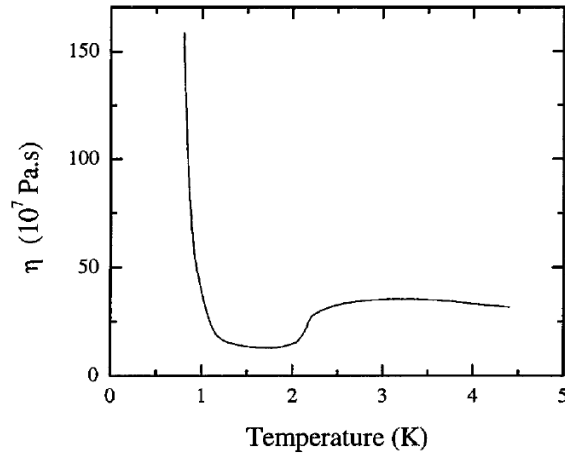


図 1.3. 飽和蒸気圧における液体ヘリウム 4 の粘性係数の温度依存性。

方程式は、Gibbs-Duhem の関係を用いて

$$\frac{\partial \mathbf{v}_s}{\partial t} = -\nabla \mu = \sigma \nabla T - \frac{1}{\rho} \nabla p \quad (1.6)$$

と書ける。 μ は化学ポテンシャル、 T は温度である。

液体ヘリウム 4 の粘性係数 η は図 1.3 のような温度依存性を示す [14]。超流動転移温度 T_λ 以下の粘性係数の振舞いは二流体モデルで説明され、粘性を持つ常流動成分が存在しているために全体として実効的な粘性係数が有限に存在する。1K 以下の低温では急激に上昇しているのは、散乱を起こす超流動中の熱励起が減少することで、弾道 (ballistic) 領域に入るためである。

超流動ヘリウムにおける音波

上述の流体力学方程式から、以下の二つの波動方程式が求まる。

$$\frac{\partial^2 \rho}{\partial t^2} = \nabla^2 p \quad (1.7)$$

$$\frac{\partial^2 \sigma}{\partial t^2} = \frac{\rho_s \sigma^2}{\rho_n} \nabla^2 T \quad (1.8)$$

圧力 p と温度 T を、密度 ρ と単位質量あたりのエントロピー σ の微分

$$\delta p = \left(\frac{\partial p}{\partial \rho} \right)_\sigma \delta \rho + \left(\frac{\partial p}{\partial \sigma} \right)_\rho \delta \sigma \quad (1.9)$$

$$\delta T = \left(\frac{\partial T}{\partial \rho} \right)_\sigma \delta \rho + \left(\frac{\partial T}{\partial \sigma} \right)_\rho \delta \sigma \quad (1.10)$$

で表すと、

$$\frac{\partial^2 \rho}{\partial t^2} = \left(\frac{\partial p}{\partial \rho} \right)_\sigma \nabla^2 \rho + \left(\frac{\partial p}{\partial \sigma} \right)_\rho \nabla^2 \sigma \quad (1.11)$$

$$\frac{\partial^2 \sigma}{\partial t^2} = \frac{\rho_s \sigma^2}{\rho_n} \left[\left(\frac{\partial T}{\partial \rho} \right)_\sigma \nabla^2 \rho + \left(\frac{\partial T}{\partial \sigma} \right)_\rho \nabla^2 \sigma \right] \quad (1.12)$$

なる密度 ρ と単位質量あたりのエントロピー σ の波動方程式が導ける。これらの方程式を同時に満たす解として、

$$\begin{aligned} \rho(x, t) &= \rho_0 + \rho' \exp(i\omega(t - x/v)) \\ \sigma(x, t) &= \sigma_0 + \sigma' \exp(i\omega(t - x/v)) \end{aligned}$$

なる平面波を仮定する。ここで ρ_0, σ_0 は共に密度と単位質量あたりのエントロピーの平衡値、 ρ', σ' は振幅であり、 ω は角周波数、 v は平面波の位相速度である。これらを代入すると、波動方程式は

$$\rho' \left[\left(\frac{v}{c_1} \right)^2 - 1 \right] - \sigma' \left(\frac{\partial p}{\partial \sigma} \right)_\rho \left(\frac{\partial \rho}{\partial p} \right)_\sigma = 0 \quad (1.13)$$

$$\rho' \left(\frac{\partial T}{\partial \rho} \right)_\sigma \left(\frac{\partial \sigma}{\partial T} \right)_\rho - \sigma' \left[\left(\frac{v}{c_2} \right)^2 - 1 \right] = 0 \quad (1.14)$$

となる。ここで

$$c_1^2 = \left(\frac{\partial p}{\partial \rho} \right)_\sigma \quad (1.15)$$

$$c_2^2 = \frac{\rho_s \sigma^2}{\rho_n} \left(\frac{\partial T}{\partial \sigma} \right)_\rho \quad (1.16)$$

とした。 $\rho' \neq 0, \sigma' \neq 0$ なる解を持つためには

$$\left[\left(\frac{v}{c_1} \right)^2 - 1 \right] \left[\left(\frac{v}{c_2} \right)^2 - 1 \right] = \left(\frac{\partial p}{\partial \sigma} \right)_\rho \left(\frac{\partial \rho}{\partial p} \right)_\sigma \left(\frac{\partial T}{\partial \rho} \right)_\sigma \left(\frac{\partial \sigma}{\partial T} \right)_\rho = \left(\frac{\partial p}{\partial T} \right)_\rho \left(\frac{\partial T}{\partial p} \right)_\sigma \quad (1.17)$$

を満たせば良い。偏微分の恒等式

$$\left(\frac{\partial x}{\partial y} \right)_z \left(\frac{\partial y}{\partial z} \right)_x \left(\frac{\partial z}{\partial x} \right)_y = -1$$

を用いると式 (1.17) は

$$\left[\left(\frac{v}{c_1} \right)^2 - 1 \right] \left[\left(\frac{v}{c_2} \right)^2 - 1 \right] = - \left(\frac{\partial p}{\partial T} \right)_\rho \left(\frac{\partial \sigma}{\partial p} \right)_T \left(\frac{\partial T}{\partial \sigma} \right)_\rho = - \left(\frac{\partial p}{\partial T} \right)_\rho \left(\frac{\partial \sigma}{\partial p} \right)_T \frac{T}{C_p} \quad (1.18)$$

となる。ここで C_p は定圧比熱である。Maxwell の関係式

$$\begin{aligned}\left(\frac{\partial\sigma}{\partial p}\right)_T &= -\left(\frac{\partial V}{\partial T}\right)_p \\ \left(\frac{\partial\sigma}{\partial V}\right)_T &= \left(\frac{\partial P}{\partial T}\right)_V\end{aligned}$$

を用いて、熱力学的取り扱いにおいて粒子数を一定と考え、密度一定を体積一定と読み替えると

$$\left[\left(\frac{v}{c_1}\right)^2 - 1\right]\left[\left(\frac{v}{c_2}\right)^2 - 1\right] = \left(\frac{\partial\sigma}{\partial V}\right)_T \left(\frac{\partial V}{\partial T}\right)_p \frac{T}{C_p} \quad (1.19)$$

となる。更に偏微分の恒等式

$$\left(\frac{\partial f}{\partial x}\right)_z = \left(\frac{\partial f}{\partial x}\right)_y + \left(\frac{\partial f}{\partial y}\right)_x \left(\frac{\partial y}{\partial x}\right)_z$$

を用いて

$$\begin{aligned}\left[\left(\frac{v}{c_1}\right)^2 - 1\right]\left[\left(\frac{v}{c_2}\right)^2 - 1\right] &= \left[\left(\frac{\partial\sigma}{\partial T}\right)_p - \left(\frac{\partial\sigma}{\partial T}\right)_V\right] \frac{T}{C_p} \\ &= \frac{C_p - C_V}{C_p} \sim 0\end{aligned} \quad (1.20)$$

と書き直すことができる。ここで C_p 、 C_V はそれぞれ定圧、定積比熱であり、液体ヘリウムの場合ほぼ同じ値をとる。そのため c_1 、 c_2 は独立にこの波動方程式の解と見做せ、それぞれ第一音波、第二音波の音速である。

第一音波は通常の流体力学における音波に相当し、密度揺らぎが伝播する音波である。この時、超流動成分と常流動成分は同位相で同じ速度で運動する ($\mathbf{v}_n = \mathbf{v}_s$)。一方で第二音波はエントロピーの揺らぎが伝播する温度波であり、超流動成分と常流動成分は全質量流密度 \mathbf{j} を一定に保つように逆位相で運動する。

更にスーパーリーク (常流動成分が粘性のために流動性を失うような小さい構造) 中では第四音波と呼ばれる音波が励起される。第四音波の音速は近似的に

$$c_4^2 = \frac{\rho_s}{\rho} c_1^2 + \frac{\rho_n}{\rho} c_2^2 \quad (1.21)$$

と書ける。多孔体や微細構造を用いた研究においては、この第四音波を利用した実験も多く行われている。また力学共鳴実験では観測信号にカップルして現れることも多く、多孔体中の超流動性を顕著に反映した音波であると言える。図 1.4 に第一音波、第二音波ならびに第四音波音速の温度依存性を示す [14]。第一音波音速は液体ヘリウムの密度の温度依存性が超流動転移温度 T_λ で極大を示すことを反映して鋭い極小を持つ。第二音波音速は超流動転移温度 T_λ から成長し、1K 以下で急激に増加する。第四

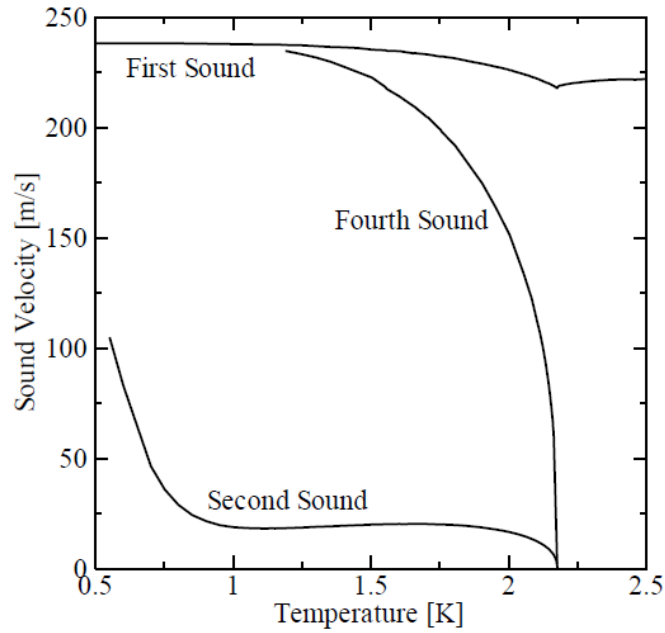


図 1.4. 飽和蒸気圧における液体ヘリウム 4 の音速の温度依存性。第一音波は通常の液体を伝播する古典的な音波で、常流動相から存在し、 T_λ における密度の小さな極大を反映して T_λ で極小を持つ。第二音波と第四音波は超流動ヘリウムの二流体モデルの帰結として現れる音波で、 T_λ 以下で低温に向かって成長する。

音波は超流動密度が低温に向かって成長するに従って第二音波音速から第一音波音速に近づくように温度変化する。

これらの他にも超流動ヘリウムには薄膜上の表面波である第三音波や、スーパーリーク中で圧力揺らぎを起こさない条件の下で励起される第五音波が存在する。

巨視的波動関数、超流動速度と量子渦

超流動秩序は、波動関数のゲージ対称性が破れた状態であり、系が巨視的なスケールに亘って一つの波動関数で記述されるような状態にある [15]。超流動ヘリウム 4 の場合、秩序変数として以下の巨視的波動関数を採用する。

$$\Psi(\mathbf{r}, t) = \sqrt{n_s(\mathbf{r}, t)} e^{i\phi(\mathbf{r}, t)} \quad (1.22)$$

量子力学的位相 $\phi(\mathbf{r}, t)$ 、振幅に超流動密度 $n_s(\mathbf{r}, t)$ を持つ複素数の関数であり、量子力学における波動関数と同様の取り扱いができる。量子力学における確率の流れの密度を巨視的波動関数に適用し、質量流密度と読み替えることにより、超流動速度と位相の関係が求まる。

$$\mathbf{v}_s = \frac{\hbar}{m_4} \nabla \phi \quad (1.23)$$

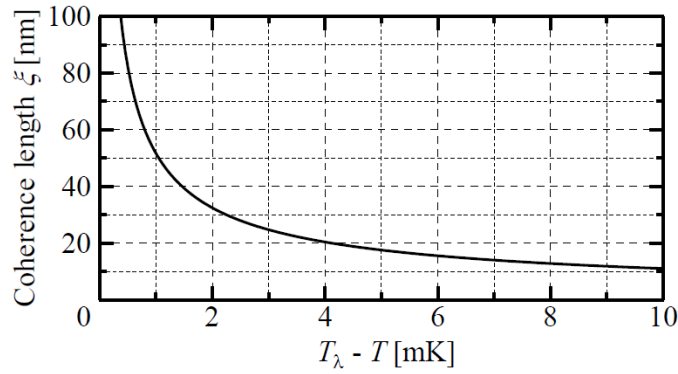


図 1.5. 超流動ヘリウム 4 のコヒーレンス長の温度依存性。温度は超流動転移温度から測っている。

ここで m_4 は ^4He 原子の質量である。巨視的波動関数の位相は超流動速度について流れのポテンシャルに相当する。

超流動速度が位相の勾配で記述されることから、超流動中に生じる渦は循環が量子化される。超流動速度に対して循環 Γ は

$$\Gamma = \oint_C \mathbf{v}_s \cdot d\mathbf{l} = \frac{\hbar}{m_4} \oint_C \nabla\phi \cdot d\mathbf{l} \quad (1.24)$$

と書ける。右辺の位相勾配の周回積分は経路に沿って一周回った時の位相の変化量を意味するが、波動関数の一価性からこの値は 2π の整数倍の値のみ許される。このことから循環は

$$\Gamma = \frac{h}{m_4} n \equiv \kappa_4 n \quad (n = 0, 1, 2, \dots) \quad (1.25)$$

と表される。ここで κ_4 は循環量子と呼ばれる。エネルギーの議論から n が大きい渦が 1 本生成するよりも $n = 1$ の量子渦が複数存在する状態の方が一般に安定になる。1 本の量子渦によって生じる流れ場は渦の中心からの距離 r に対して

$$v_s(r) = \frac{\kappa_4}{2\pi r} \mathbf{e}_\theta \quad (1.26)$$

と変化し、そのため渦の中心付近では発散的に大きくなってしまふ。実際にはある臨界速度を超えた部分は超流動が壊れた領域となり、量子渦の中心には渦芯と呼ばれる構造が生じて超流動の位相欠陥となる。渦芯の半径はコヒーレンス長 (回復長) に対応しており、秩序変数は渦芯内部で中心に向かって減衰する。

コヒーレンス長 ξ は秩序変数の自由度である超流動密度と位相の空間変化の長さスケールに相当する量であり、図 1.5 に示すように超流動転移温度で発散し、 $T \rightarrow 0$ で有限の値を持つ。転移点での発散は超流動が系全体で壊れることを意味し、常流動状

態に繋がっていく。ヘリウム 4 ではコヒーレンス長は絶対零度で数 Å 程度である。

容器壁などの界面近傍では、コヒーレンス長に亘って秩序変数が境界条件の影響を受ける。界面で $\rho_s = 0$ とすると、超流動密度がバルクの値に回復するまでコヒーレンス長程度離れなければならない。そのためコヒーレンス長程度のサイズの制限空間中では超流動性が抑制されることになる。

1.2 臨界速度、位相スリップと Josephson 効果

超流動は粘性散逸が無いため、駆動力がかかると単純にはいくらでも加速されることになる。実際には超流動がエネルギー的に不安定になる臨界速度で散逸が生じる。

Landau の臨界速度基準

1941 年に L. D. Landau は超流動中の集団励起として縦フォノンとロトンの存在を提唱し、1947 年に図 1.6 に示す分散関係を導いた。Landau の臨界速度基準はこの素励起スペクトルをもとに説明される。超流動を特徴付ける永久流状態は運動エネルギーを持つ分、真の基底状態ではなく準安定状態にある。超流動流によって準安定状態からの逸脱に係るエネルギー障壁が減少し、素励起が自発的に励起されるようになった時に超流動流が不安定になったと考え、このときの超流動速度を臨界速度と解釈する。簡単のため純粋な超流動を考え、素励起の運動量とエネルギーを \mathbf{p} 、 $\epsilon_{\mathbf{p}}$ とすると、超流体が速度 \mathbf{v}_s で流れている時の素励起のエネルギーは Galilei 変換により

$$\epsilon'_{\mathbf{p}} = \epsilon_{\mathbf{p}} + \mathbf{p} \cdot \mathbf{v}_s \quad (1.27)$$

と書ける。流れによってエネルギーが負になる ($\epsilon'_{\mathbf{p}} < 0$) とき、素励起が自発的に励起することになる (負の励起)。これを満たす最小の超流動速度 v_c は

$$v_c = \min \left(\frac{\epsilon_{\mathbf{p}}}{p} \right) \quad (1.28)$$

と表せる。この臨界速度は図 1.6 の分散関係においてロトンの極小付近の値で与えられ、 $v_c \approx 60 \text{ m/s}$ となる。この臨界速度は超流動が不安定になる十分条件を示しているのみで、実際の系ではこの臨界速度より数桁小さい場合が多い。臨界速度は構造や温度の影響を強く受けるが、それらの効果は量子渦の発生と運動により説明される。

位相スリップ

量子渦による超流動流の減衰機構の説明には、噴流中における渦輪の生成や界面で生じた渦糸の伸張などが挙げられる。特に流路を流れる超流動中での減衰機構は位相

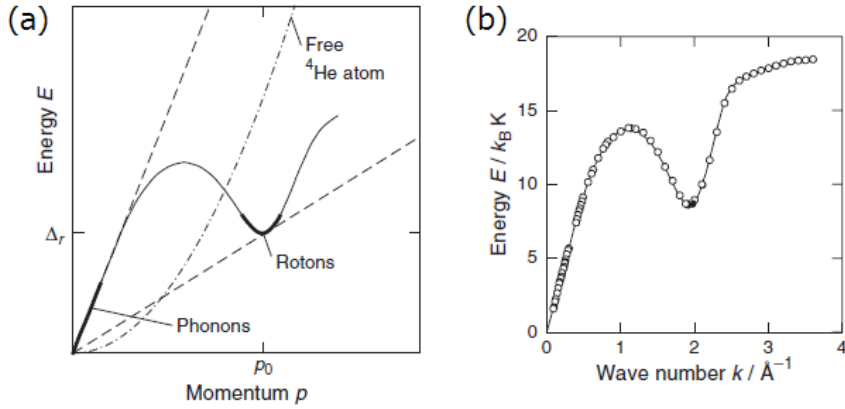


図 1.6. (a)L. D. Landau によって提唱された超流動ヘリウム 4 における素励起の分散関係。(b) 非弾性中性子散乱によって実験的に得られた素励起スペクトル [16]。

スリップと呼ばれる現象として理解されている。図 1.7 に示すように流路壁面で生成した量子渦が流路を横切って移動することで超流動速度が減少すると考える。位相スリップでは、流路中の 1 本の量子渦の運動の効果を考えるため、超流動流の減衰を議論する上で一つの理想的な状態にあるといえる。

超流動の位相と化学ポテンシャルの間には

$$\frac{\partial \Delta \phi}{\partial t} = -\frac{\Delta \mu}{\hbar} \quad (1.29)$$

なる関係が成り立つ [17]。この関係は Josephson-Anderson の位相発展方程式と呼ばれ、任意の 2 点間の位相差 $\Delta \phi$ が化学ポテンシャル差 $\Delta \mu$ によって時間発展することを表している。図 1.7 のような直線的な流路(長さ l)を考えると、その両端に(簡単のため)時間に対して一定な化学ポテンシャル差 $\Delta \mu$ が働くとき、超流動速度は

$$v_s = \frac{\hbar}{m_4} \frac{\Delta \phi}{l} = -\frac{\Delta \mu}{m_4 l} t \quad (1.30)$$

と書ける。超流動流には粘性抵抗が無い場合、超流動速度は化学ポテンシャル差 $\Delta \mu$ によって無限に加速されることになる。実際には臨界速度に到達すると流路の端に量子渦が発生し、流路を横切って運動することで超流動速度が減少する。その後超流動速度は再び化学ポテンシャル差によって加速され、スリップを繰り返すことになる(図 1.8)。

図 1.7(a) は流路中に一様な超流動の流れが生じている状態を $\pi/2$ 毎の等位相面で示している。超流動流は等位相面に垂直に流れ、速度は等位相面の密度に比例する。図 1.7(b) では、臨界速度において壁近傍に量子渦が生じた状態を示している。 $n = 1$ であ

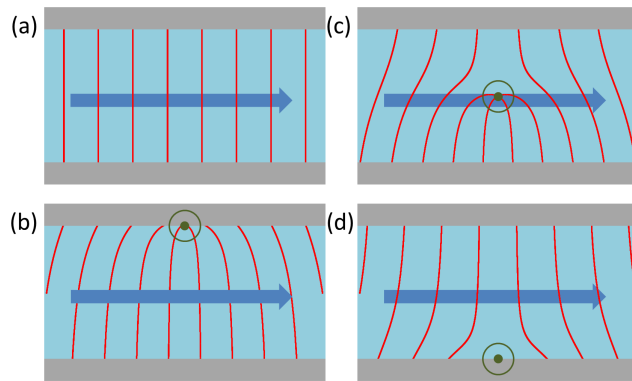


図 1.7. 位相スリップの概念図。図中の等位相面は $\pi/2$ 間隔で示している。(a) 一様流が生じており、等位相面は平行に並んでいる。(b) 流路の壁面に量子渦が生じ、それによって近傍の等位相面が歪んでいる。(c) 発生した量子渦が流路を横切って運動すると、等位相面の数は図中の量子渦の上下で 4 本違っている。(d) 量子渦が反対側の壁面に到達し、等位相面が 4 つ減少している。

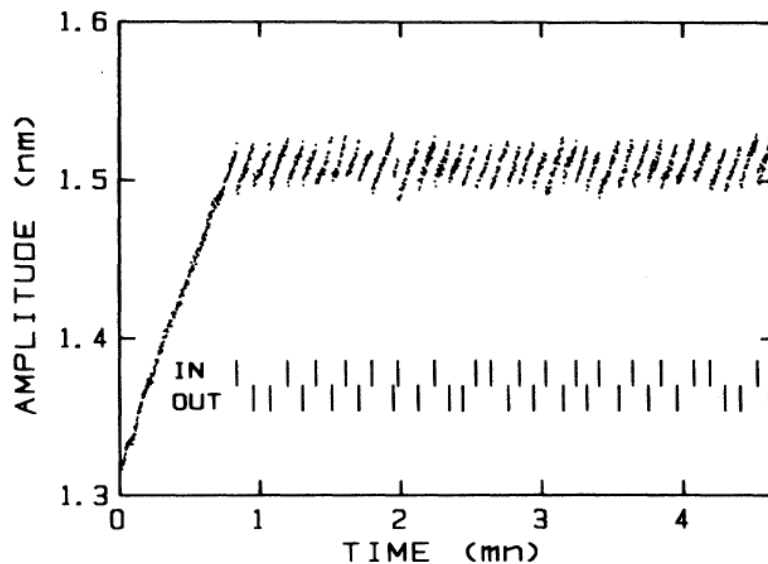


図 1.8. 超流動流における位相スリップ。縦軸の振幅は超流動速度に対応しており、時間に対して不連続な飛びが位相スリップを表している。

れば 1 本の量子渦の周りには渦流に対応した 2π の位相勾配が生じており、流路内の位相の分布ははじめの一様流と量子渦による流れの重ね合わせとなる。図 1.7(c) では量子渦が壁から離れて流路の中央に来た瞬間の様子を示している。量子渦の上部と下部で等位相面の数が 4 つ異なっている。そのまま量子渦が流れを横切ると、図 1.7(d) のように 4 つの等位相面が量子渦に巻き込まれるようにして消滅している。すなわ

ち 2π だけ位相差が減少し、超流動速度も対応した量だけ減少する。典型的な流路のサイズに比べて量子渦の運動が早く、瞬間的に位相差が 2π 減少するためこの現象は 2π 位相スリップと呼ばれる。位相スリップの実験的検証は超流動流の直接測定により早くから行われており、渦のピン止めなど、流れ特性の詳細は流路の形状に依存する [18, 19]。一方で、位相スリップを起こした量子渦がどのように消滅するのかは明らかではないが、流路の端から渦輪として放出される可能性が考えられる。

Josephson 効果

Josephson 効果は巨視的量子状態の重要な結果の一つであり、量子力学の概念を直接的に反映した顕著な例である [20]。Josephson 効果は先に超伝導において提案された現象であるが、超伝導と対応関係にある超流動や冷却原子系においても実験的に実現されている。超流動ヘリウムの場合、実験的には位相スリップと対となって観測される。

巨視的波動関数が良く定まった二つの超流動体を、コヒーレンス長程度のサイズの流路で接続することを考えると、流路中の液体ヘリウムは壁面の影響によりその超流動性が強く抑制される。この流路が十分短い場合、接続された二つの超流動体の波動関数が互いに染み出して重なり合い、その位相差に対応した流れが生じる。これは量子力学のトンネル効果に対応する現象であり、ポテンシャル障壁として機能するような流路は弱接合 (Josephson 接合) と呼ばれる。

図 1.9 に示す左右の超流動体の巨視的波動関数をそれぞれ Ψ_L 、 Ψ_R と書くと、時間

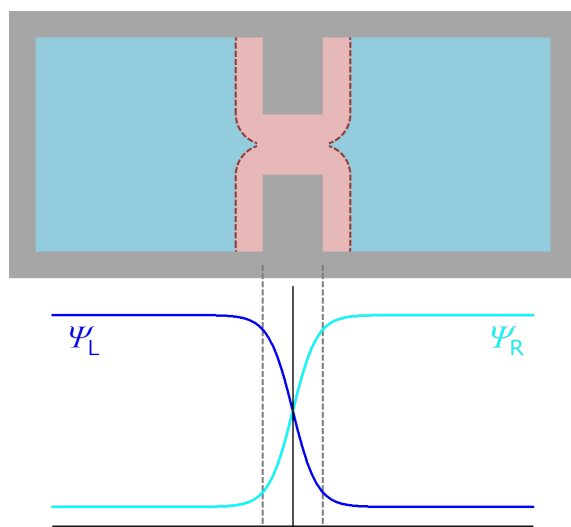


図 1.9. ジョセフソン効果の概念図。流路がコヒーレンス長程度に小さい場合に、波動関数が抑制を受けて染み出す様子を示している。

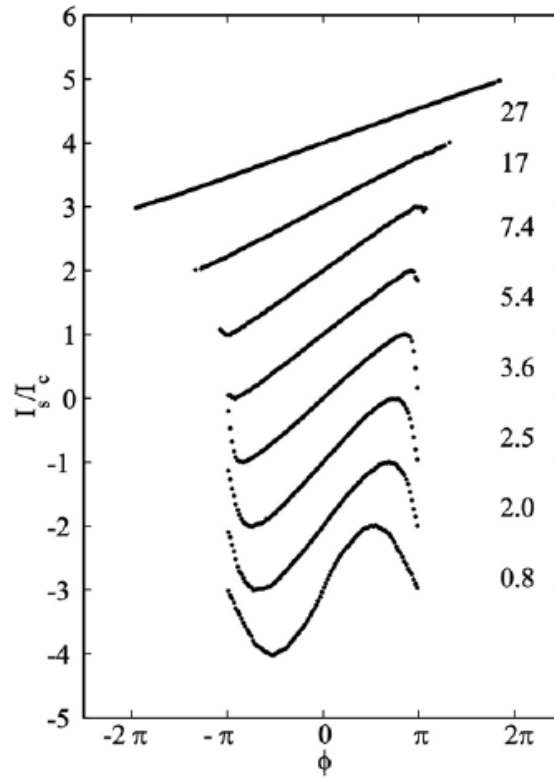


図 1.10. 異なる温度における位相差と超流動質量流の関係。図中の温度は超流動転移温度から測った温度である。超流動転移温度近傍では Josephson 流の振舞いをしているが、低温に向かって線形な関係に近づいていく。

に依存する Schrödinger 方程式は

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial \Psi_L}{\partial t} &= \mu_L \Psi_L + K \Psi_R \\ i\hbar \frac{\partial \Psi_R}{\partial t} &= K \Psi_L + \mu_R \Psi_R \end{aligned}$$

と書ける。ここで K は接合における巨視的波動関数の染み出しを記述する定数とする。それぞれの巨視的波動関数を $\Psi_L = \sqrt{n_L} e^{i\phi_L}$ 、 $\Psi_R = \sqrt{n_R} e^{i\phi_R}$ と書き、位相差を $\Delta\phi = \phi_R - \phi_L$ とすると、

$$\frac{\partial n_L}{\partial t} = -\frac{\partial n_R}{\partial t} = \frac{2K}{\hbar} \sqrt{n_L n_R} \sin \Delta\phi \quad (1.31)$$

となる。粒子数の増減は弱接合を通る質量流 I_s によるので、

$$I_s = I_c \sin \Delta\phi \quad (1.32)$$

となる。係数 I_c は臨界質量流と呼ばれる。実際の系において位相差は化学ポテンシヤ

ルで制御される。Josephson-Anderson の位相発展方程式を用いると、化学ポテンシャル差が時間に依らず一定であるとしたとき

$$I_s = I_c \sin\left(-\frac{\Delta\mu}{\hbar}\right)t \quad (1.33)$$

と時間振動することになる。この現象を交流 Josephson 効果、振動の周波数 $f_J = \Delta\mu/\hbar$ は Josephson 周波数と呼ばれる。

超流動 Josephson 効果は R. E. Packard のグループによって実験的に良く調べられている。彼らが作成した弱接合は孔径 40 nm、長さ 50 nm の孔が 3 μm 間隔で正方格子状に 65 \times 65 個配列したものであった。コヒーレンス長は温度依存し、超流動ヘリウム 4 の場合には絶対零度で数 Å になるため、低温では弱接合として機能しない。このような温度領域では強接合と呼ばれ、超流動を維持したまま接合で接続される (図 1.10)[21]。この場合、接合内では位相スリップが生じることになるが、位相スリップによる鋸状の振動の周波数は Josephson 周波数と一致する。超流動転移温度近傍では理想的な Josephson 振動が見られるが、低温に向かって臨界質量流は増加、正弦波的な振動は歪んで臨界質量流が 2π のスリップ量に対応するところで振舞いは位相スリップに接続する。

1.3 普遍性クラスと制限空間中超流動

一般に秩序相の実現を伴う相転移では、転移点において系を特徴付ける種々の物理量が発散的振る舞いをし、この発散の度合いを記述する臨界指数が定義される。臨界指数は物理量ごとに定義されるが、普遍性クラスによって決まった値の組を取る。秩序相を伴う相転移は様々な物理的な系で実現されるが、その系の詳細に依らず、次元や秩序変数の自由度など幾つかの基本的な情報のみで普遍性クラスに分類できる。3 次元における超流動の場合、秩序変数である巨視的波動関数が複素空間での振幅と位相の 2 つの自由度を持つため、3 次元 XY モデルに属する [23, 24, 25]。

種々の物理量に対して、臨界挙動は換算温度 $t \equiv 1 - T/T_\lambda$ を用いて

$$C \propto t^{-\alpha} \quad (1.34)$$

$$\chi \propto t^{-\gamma} \quad (1.35)$$

$$|\Psi| \propto t^\beta \quad (1.36)$$

$$\xi \propto t^{-\nu} \quad (1.37)$$

と書ける。ここで C 、 χ 、 $|\Psi|$ および ξ はそれぞれ比熱、感受率、秩序変数 (の振幅) と相関長である。また相関関数の臨界挙動は

$$G(r, t = 0) \propto r^{d-2+\eta} \quad (1.38)$$

と書ける。この時の指数 α 、 β 、 γ 、 ν 、 η 等が臨界指数であり、これらの間には Fisher のスケーリング関係式

$$\gamma = \nu(2 - \eta) \quad (1.39)$$

と Rushbrooke の法則

$$\alpha + 2\beta + \gamma = 2 \quad (1.40)$$

また $d \leq d_u$ (d_u は上部臨界次元) においては Josephson の関係 (ハイパースケーリング)

$$\alpha = 2 - \nu d \quad (1.41)$$

といった関係式が成り立つ。超流動密度の臨界挙動を

$$\rho_s \propto t^\zeta \quad (1.42)$$

と書くことがあるが、 $\rho_s = |\Psi|^2$ であるので $\zeta = 2\beta$ である。

それぞれの臨界指数は平均場理論を用いて計算できるが、一般に低次元では揺らぎの効果が大きく、平均場近似が破綻する。臨界指数の実際の値に対して平均場理論の結果が妥当になる次元が上部臨界次元 d_u である。また下部臨界次元 d_l 以下の次元では有限温度で相転移が生じない。上部臨界次元は平均場理論の値を用いて

$$d_u = \frac{2\beta + \gamma}{\nu} \quad (1.43)$$

と書け、XY モデルでは上部臨界次元は 4 次元である。

3 次元 XY モデルにおける臨界指数は繰り込み群を用いて計算されている [26]。その結果と平均場理論の結果を表 1 に示す。3 次元 XY では超流動密度の臨界指数は 2/3 という値を取るとされている。XY モデルにおいて上部臨界次元が $d_u = 4$ であることから、4 次元以上の臨界性を持つ場合には超流動密度の臨界指数は平均場理論の値 $\zeta = 2\beta = 1$ となることが期待される。

ナノメートルサイズの制限空間に閉じ込められた液体ヘリウムは、サイズ効果により超流動転移温度が低温にシフトする。典型的には Vycor ガラスや Aerogel といったメソポーラス材料が用いられる。これらはナノメートルサイズの孔が 3 次元的にネットワークを組んだ構造を持つ多孔材料である。Vycor ガラスでは空孔率は 30 %

表 1. 3 次元 XY と平均場理論で得られた臨界指数。

	α	β	γ	ν
3D XY	-0.01	0.35	1.32	0.67
平均場理論	0	0.5	1	0.5

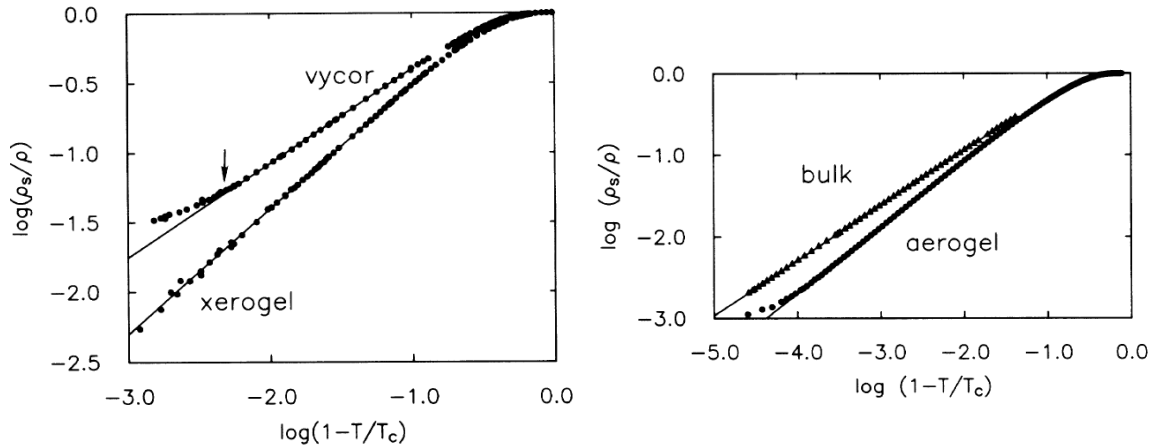


図 1.11. Vycor、Xerogel と Aerogel における超流動密度の換算温度依存性。Vycor のプロットに対する矢印は、超流動密度の振舞いが単一の指数から逸脱する点を示している。

程度であるのに対し、Aerogel は 90 % 以上という非常に大きな空孔率を持つ。このような制限空間中の超流動転移の抑制の機構を調べるため、転移温度近傍における超流動密度の温度依存性の詳細な実験が行われてきた [27, 28, 26, 29]。図 1.11 に示す実験結果では、 $t < 0.1$ において超流動密度は両対数プロットで良く直線的になっている。超流動転移温度のシフトに伴い超流動密度も抑制を受けているものの、その臨界指数は Vycor ガラスでは $\zeta = 0.67$ とバルクとほぼ一致する値が得られている。一方で Aerogel 中では $\zeta = 0.81$ 、また同様の高空孔率の材料である Xerogel においては $\zeta = 0.89$ という値が得られているが、これは Aerogel や Xerogel の構造がフラクタルになっているためと考えられている。

図 1.11 において図中の矢印で示されるように、超流動転移点のごく近傍では両対数プロットが直線から外れる場合がある。この逸脱は多孔体試料に依存するため、臨界現象に本質的な振舞いではなく多孔体中への閉じ込めの効果による性質であると考えられる。そのため臨界挙動の解析においてはこのような逸脱は除いて議論される。

1.4 不均一構造中の臨界現象と Harris の基準

液体ヘリウム 4 の超流動転移に対する制限空間への閉じ込めの効果は、前述のような Vycor や Aerogel のような不均一構造を持つ多孔体を用いて実験的に調べられてきた。このような構造の不均一性が臨界現象に及ぼす効果を調べるため、A. B. Harris はサイト間のボンド (相互作用定数) に欠陥を含む Ising 模型を理論的に調べた [30]。その結果 Harris は、不純物を含まない (構造的不均一性を持たない) 系において比熱の臨界指数 α が負の値を取る場合には、その系の臨界現象は構造不均一性の影響を

受けないという結論を得た。この臨界指数 $\alpha < 0$ という条件は Harris の基準 (Harris criterion) と呼ばれている。

液体ヘリウム 4 の比熱の臨界指数 α は実験的に調べられており、特に J. A. Lipa らは圧力勾配による相転移の鈍りを除くため無重力環境において転移温度 T_λ のごく近傍で α の値を詳細に調べ、 $\alpha = -0.0127$ という値を得た [25, 31]。液体ヘリウム 4 の超流動転移においては、臨界指数 α は小さいが負の値を取り、制限空間への閉じ込めにおいて構造的不均一性は臨界現象に影響しないと期待される。Vycor において超流動密度の臨界指数 ζ がバルク超流動ヘリウム 4 の場合と同じ値を取ることは、この Harris の基準に合う結果である。またポーラス金と呼ばれる多孔質材料に閉じ込めた液体ヘリウム 4 においても臨界指数は $\zeta = 0.67 \pm 0.01$ と得られており、バルクと同じ臨界現象を示している [32]。

一方で Aerogel や Xerogel 中のヘリウム 4 においては、前述の通り臨界指数はバルクの値とは異なっており、Harris の基準の期待と符合しない。J. Yoon らは空孔率が異なる複数の Aerogel 試料を用いて、超流動密度と比熱の臨界挙動を調べた [33]。空孔率が大きくなる程 (不純物としての Aerogel の密度が小さい程) 超流動密度の臨界指数 ζ と比熱の臨界指数 α はバルクの値に近付き、また相転移点における比熱異常の抑制は緩和されるものの、依然としてバルクとは異なる値を取っている。この原因は明らかではないが、Aerogel や Xerogel では不均一構造が空間的に相関を持っている (correlated disorder) ためと考えられている [34, 35]。

第 2 章 ナノ多孔体中ヘリウム 4 と量子相転移

本章ではより本研究の具体的な背景として、より詳細な量子相転移の議論とナノ多孔体中ヘリウム 4 の超流動物性について述べる。ナノ多孔体中ヘリウム 4 では最も顕著なサイズ効果として、超流動転移温度と超流動密度の抑制が知られており、Vycor ガラスや Aerogel 等で良く調べられてきた。近年、より小さな細孔径を持つ Gelsil ガラスにおいてはヘリウム 4 の超流動秩序が大きく変更を受けることが実験的に示された。高圧下では絶対零度まで転移温度が抑制されて、局在 BEC 状態と名付けられた非自明な非超流動状態との間で量子相転移を示す。Gelsil 中ヘリウム 4 の超流動転移と量子臨界点の性質は理論的にも調べられており、古典的な 4 次元 XY モデルで記述されることが示唆されている。局在 BEC 状態と量子相転移の出現は FMS 等、Gelsil 以外の多孔体においても確認されている。

本研究ではナノ多孔体中ヘリウム 4 の量子相転移の機構解明と量子臨界点の性質の調査のため、Gelsil ガラス中のヘリウム 4 の流れを伴う共鳴実験を行い、有限温度の超流動転移点の近傍で臨界挙動を調べた。本章ではまず一般的な量子相転移の議論を述べた後、これまで Gelsil 中ヘリウム 4 の超流動研究によって分かっている事実を説明する。

2.1 量子相転移

有限温度の相転移は熱揺らぎによって秩序状態が壊されることに起因するが、絶対零度では熱揺らぎの代わりに量子揺らぎが相転移を引き起こす場合がある。このような量子揺らぎに駆動される相転移は量子相転移と呼ばれ、秩序相、非秩序相のいずれにおいても量子効果が顕著となる。相転移を駆動する量子揺らぎは Heisenberg の不確定性関係に起因する。量子相転移における物理現象の理解には、温度ではない系に特徴的な別の制御パラメータ g が用いられ、量子相転移を起こす値 $g = g_c$ は量子臨界点 (Quantum Critical Point, QCP) と呼ばれる。量子相転移は 2 種類に分別され、一方では相転移は絶対零度でのみ実現する。他方は図 2.1 に示すように、有限温度において相転移が実現し相境界線が量子臨界点に至る。後者の場合でも、厳密には量子相転移は絶対零度で定義される現象であるが、一般に量子臨界点近傍であれば有限温度でも系の性質は量子臨界点に支配されるため、量子相転移の性質は実験的に調査することができる。

量子揺らぎが系にとって重要になる条件は、量子揺らぎに特徴的な角周波数 ω を用いて $\hbar\omega > k_B T$ と書ける。すなわち低温では熱揺らぎに対して量子揺らぎが優勢になっている。一般に量子相転移系の相図は図 2.1 に示すように秩序相と無秩序相(ある

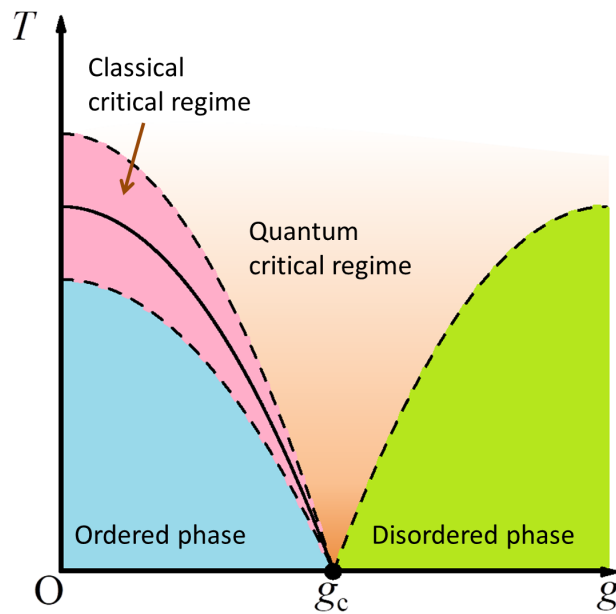


図 2.1. 一般的な量子系における相図。 $g = g_c$ において量子相転移を示す。有限温度の相転移では熱揺らぎが優勢となり古典的な相転移になる。

いは秩序状態が異なる 2 つの相) の間に、無秩序相において量子効果が強い量子臨界領域 (Quantum critical regime) が存在し、重い電子系における異常 Fermi 液体といった非自明な状態が生じる。秩序相も量子揺らぎの効果を強く受けているが、有限温度の相境界近傍においては熱揺らぎが急激に発達するため、任意の有限温度における相転移は一般に古典的な性質を持つ。

量子相転移を示す系の臨界挙動は熱的な相転移の場合と一般に異なっており、 d 次元の量子系の臨界挙動は $d + z$ 次元の古典系の臨界挙動で記述できる場合がある (z は動的臨界指数)。これは空間的広がりを持つ熱揺らぎに対し、虚時間に広がりを持つ量子揺らぎのスケールが加わることに起因する。絶対零度においては d 次元の量子系は理想的な $d + z$ 次元の古典的な臨界挙動で記述されるが、任意の有限温度の臨界点においては熱揺らぎの広がりの特徴付ける相関長が発散するため、系の振る舞いは d 次元の古典系になる。本章では臨界挙動の立場から量子相転移の議論を概説する。

2.2 経路積分

量子力学においては量子揺らぎのために系の状態は古典系のように始状態と支配方程式から一意に求まるものではなく、終状態に至るまでに取り得る状態は無数に存在する。このことから量子力学的状態には確率解釈が適用でき、重ね合わせの原理が成立する。このような量子系が始状態から終状態に至るまでに取り得る経路の寄与をす

べて取り入れた理論が Feynman の経路積分の方法である [36]。

まず内部自由度を持たない 1 粒子量子系に対して、始状態 $|x_I\rangle$ から終状態 $|x_F\rangle$ に至る時間発展の確率振幅

$$G(t) = \langle x_F | \hat{U}(t) | x_I \rangle \quad (2.1)$$

を考える。ここで $|x\rangle$ は座標演算子 \hat{x} の固有状態、 $\hat{U}(t)$ は時間発展演算子

$$\hat{U}(t) = \text{T exp} \left(-\frac{i}{\hbar} \int_0^t \hat{H}(t') dt' \right) \quad (2.2)$$

である。T は時間順序積を表しており、時間を $t = (M+1)\Delta t$ として $M+1$ 個に分割して $M \rightarrow \infty$ とする操作、すなわち

$$\hat{U}(t) = \lim_{M \rightarrow \infty} e^{-i\Delta t \hat{H}(M\Delta t)/\hbar} e^{-i\Delta t \hat{H}((M-1)\Delta t)/\hbar} \dots e^{-i\Delta t \hat{H}(\Delta t)/\hbar} e^{-i\Delta t \hat{H}(0)/\hbar} \quad (2.3)$$

である。異なる時間のハミルトニアン $\hat{H}(t)$ は一般に交換しないため、時間順序積を用いて定義している。各因子の間に完全系 $\int |x_M\rangle \langle x_M| dx_M$ を挟むと、確率振幅 $G(t)$ は

$$G(t) = \lim_{M \rightarrow \infty} \int \langle x_F | e^{-i\Delta t \hat{H}(M\Delta t)/\hbar} | x_M \rangle \langle x_M | e^{-i\Delta t \hat{H}((M-1)\Delta t)/\hbar} | x_{M-1} \rangle \dots \langle x_1 | e^{-i\Delta t \hat{H}(0)/\hbar} | x_I \rangle dx_1 \dots dx_{M-1} dx_M \quad (2.4)$$

と書ける。ある行列要素を取り出して運動量の固有状態 $|p_\mu\rangle$ の完全系を挟むと

$$\begin{aligned} \langle x_{\mu+1} | e^{-i\Delta t \hat{H}(t_\mu)/\hbar} | x_\mu \rangle &= \int \langle x_{\mu+1} | p_\mu \rangle \langle p_\mu | e^{-i\Delta t \hat{H}(t_\mu)/\hbar} | x_\mu \rangle dp_\mu \\ &\sim \int \langle x_{\mu+1} | p_\mu \rangle \left[\langle p_\mu | x_\mu \rangle - \frac{i\Delta t}{\hbar} \langle p_\mu | \hat{H}(t_\mu) | x_\mu \rangle \right] dp_\mu \\ &\sim \int \langle x_{\mu+1} | p_\mu \rangle \langle p_\mu | x_\mu \rangle \exp \left[-i\Delta t H(x_\mu, p_\mu, t_\mu) \right] dp_\mu \\ &= \int \frac{1}{2\pi} \exp \left[i\Delta t \left(p_\mu \frac{x_{\mu+1} - x_\mu}{\Delta t} - H(x_\mu, p_\mu, t_\mu) \right) \right] dp_\mu \end{aligned} \quad (2.5)$$

と書ける。ここで $\langle x|p\rangle = e^{ipx}/\sqrt{2\pi}$ を用いた。この右辺には演算子はなく全て古典的な変数であるから

$$G(t) = \lim_{M \rightarrow \infty} \prod_{\mu=1}^M \frac{1}{4\pi^2} \int \exp \left[i\Delta t \sum_{\mu=0}^M \left(p_\mu \frac{x_{\mu+1} - x_\mu}{\Delta t} - H(x_\mu, p_\mu, t_\mu) \right) \right] dx_\mu dp_\mu dp_0 \quad (2.6)$$

と書けるので、連続極限を取ると

$$G(t) = \int \mathcal{D}x(t') \mathcal{D}p(t') \exp \left[i \int_0^t \sum_{\mu=0}^M \left(p_\mu \frac{x_{\mu+1} - x_\mu}{\Delta t} - H(x_\mu, p_\mu, t_\mu) \right) dt' \right] \quad (2.7)$$

となって、これが確率振幅 $G(t)$ の経路積分表示である。これは始状態と終状態を指定した時の取り得る全ての関数の組 $(x(t'), p(t'))$ に対する汎関数積分を表している。

多体量子系の場合に分配関数 Z は定義より、 $\beta = 1/k_B T$ を用いて

$$Z = \text{Tr} e^{-\beta \hat{H}} = \sum_n \langle n | e^{-\beta \hat{H}} | n \rangle \quad (2.8)$$

と書ける。これは始状態と終状態が共に $|n\rangle$ であるような遷移を表していることができ、この経路を M 分割して間に完全系 $\sum_{n_M} |n_M\rangle \langle n_M|$ を挟むと

$$Z = \sum_{n_1} \cdots \sum_{n_M} \langle n_1 | e^{-\beta \hat{H}/M} | n_2 \rangle \cdots \langle n_M | e^{-\beta \hat{H}/M} | n_1 \rangle \quad (2.9)$$

と書ける。時間発展の確率振幅が $G(t)$ が式 (2.4) で表されることから、式 (2.9) は $M\Delta t = -i\hbar\beta$ の間に同じ状態に戻ってくる時間発展を表していると解釈することもできる。この周期 $-i\hbar\beta$ は虚時間の次元を持つ。

多体量子系のコヒーレント状態に対しては、場の演算子の固有値 ϕ 、 ϕ^* を用いて、分配関数の経路積分表示を

$$Z = \int \mathcal{D}\phi^* \mathcal{D}\phi e^{-S[\phi^*, \phi]} \quad (2.10)$$

と書く [11]。ここで作用 S は

$$S[\phi^*, \phi] = \int_0^{\hbar\beta} [-\phi^* \partial_\tau \phi + H[\phi^*, \phi]] d\tau \quad (2.11)$$

であり、虚時間に対する積分で定義される。このことから量子系においては分配関数の経路積分に実空間の次元に加えて虚時間の次元が加わることになる。

2.3 動的臨界指数

秩序相の自由エネルギー F は Ginzburg-Landau 理論によると、秩序変数 $\psi(\mathbf{r})$ を用いて

$$F(\psi, T) = \int \left[\frac{1}{2} |\nabla \psi(\mathbf{r})|^2 + \frac{a(T)}{2} |\psi(\mathbf{r})|^2 + \frac{b(T)}{4} |\psi(\mathbf{r})|^4 \right] d\mathbf{r} \quad (2.12)$$

と書ける。 $a(T)$ と $b(T)$ は秩序相のエネルギーの安定性の議論から決まる関数で、 $a(T) \sim a_0(T - T_c)$ 、 $b(T) \sim b$ である。これを用いると、作用 S は

$$S = \int \int \left[\frac{1}{2} |\nabla \psi|^2 - \frac{1}{2} \psi^* (\partial_\tau - g_0)^2 \psi + \frac{a(T)}{2} |\psi|^2 + \frac{b(T)}{4} |\psi|^4 \right] d\mathbf{r} d\tau \quad (2.13)$$

となる。 $g_0 = 0$ とできる場合には作用 S において空間微分と虚時間微分は同じ形で寄与することになるが、一般に $g_0 \neq 0$ であり $\psi^* \partial_\tau \psi$ の項が現れるため、これらの寄与は

同等でない。このことを反映して、一般に虚時間方向の相関長 ξ_τ は実空間における相関長 ξ とは異なるスケールを持ち、相転移点の近傍で

$$\xi_\tau = \xi^z \quad (2.14)$$

と表される。このときの相関長の臨界指数 z が動的臨界指数である。虚時間についての相関関数を Heisenberg 方程式を用いて書き直すと

$$\begin{aligned} \langle \psi(\tau)\psi(0) \rangle &= \langle e^{\hat{H}\tau}\psi(0)e^{-\hat{H}\tau}\psi(0) \rangle = \sum_n \langle 0|e^{\hat{H}\tau}\psi(0)|n\rangle \langle n|e^{-\hat{H}\tau}\psi(0)|0\rangle \\ &= \sum_n e^{-(E_n-E_0)\tau} |\langle n|\psi(0)|0\rangle|^2 \end{aligned} \quad (2.15)$$

と書けるので、基底状態と第一励起状態の間のエネルギーギャップ $\Delta = E_1 - E_0$ に対して

$$\xi_\tau = \Delta^{-1} \quad (2.16)$$

である。相関長 ξ は相転移の制御パラメータ δ に対して、量子臨界点 $\delta = \delta_c$ の近傍において有限温度の相転移の場合と同様に

$$\xi \propto (\delta - \delta_c)^{-\nu} \quad (2.17)$$

と書けるので、エネルギーギャップ Δ は量子臨界点における連続相転移に対して

$$\Delta \propto (\delta - \delta_c)^{\nu} \quad (2.18)$$

の形で消える。

一般に有限温度の相転移点 T_c においては虚時間方向のスケール ξ_τ は $\hbar/k_B T_c$ の値を取って有限に留まるが、実空間の相関長 ξ は相転移点において発散するため、作用の積分式 (2.13) において虚時間方向 τ の寄与は相対的に落ちて、系は d 次元の古典系の振舞いをするようになる。すなわち系は量子揺らぎより古典的な熱揺らぎが支配的になり、熱的相転移の様相を示す。一方で量子揺らぎの特徴的なエネルギースケールが熱エネルギーより大きい場合 ($\hbar\omega > k_B T$) には量子効果が顕著になる。絶対零度の量子臨界点においては虚時間方向のサイズも $\xi_\tau \propto (\delta - \delta_c)^{-\nu}$ と発散するため、式 (2.13) において虚時間 τ の寄与が残り、系は $d+z$ 次元の古典系と同等に記述できる。すなわち絶対零度では熱揺らぎが消失するため系は量子揺らぎに支配され、理想的な量子系の振舞いをするようになる。

このように量子 d 次元系は実効的に $d+z$ 次元の古典系と同等の記述を行うことができる場合があり、この性質は絶対零度で理想的に成り立つ。一方で相転移点では一般に相関長 ξ が発散するため、任意の有限温度の相転移点近傍では系は d 次元の古典的な系の振舞いになるが、量子揺らぎが熱エネルギーより大きくなるような領域では、有限温度においても量子効果は顕著に現れる。

2.4 3次元超流動ヘリウム4における量子相転移

^4He 原子系は質量が軽いために量子性が強く、高圧を除いて絶対零度まで液体として存在し、低温では量子統計性を反映して Bose-Einstein 凝縮に伴う超流動性を示す。この液体ヘリウム4をナノサイズの構造に閉じ込めると、その有限サイズ効果によって超流動転移が抑制を受ける。この様子は Vycor ガラスや aerogel 等の多孔質媒体を用いて良く調べられてきた。

近年の研究から、これらの多孔体よりも更に孔径が小さい Gelsil ガラスに液体ヘリウム4を閉じ込めたとき、その相図は劇的な変更を受けることが明らかとなった [7, 37, 38, 39, 40]。図 2.2 に Yamamoto らによって得られた公称平均孔径 2.5 nm の Gelsil 中ヘリウム4の相図を示す。超流動転移は極めて強く抑制を受け、特に高圧では超流動転移温度 T_c が絶対零度まで減少してある臨界圧力 P_c において量子相転移を示している。その高温側は単なる常流動相ではなく、非自明な非超流動状態が実現し

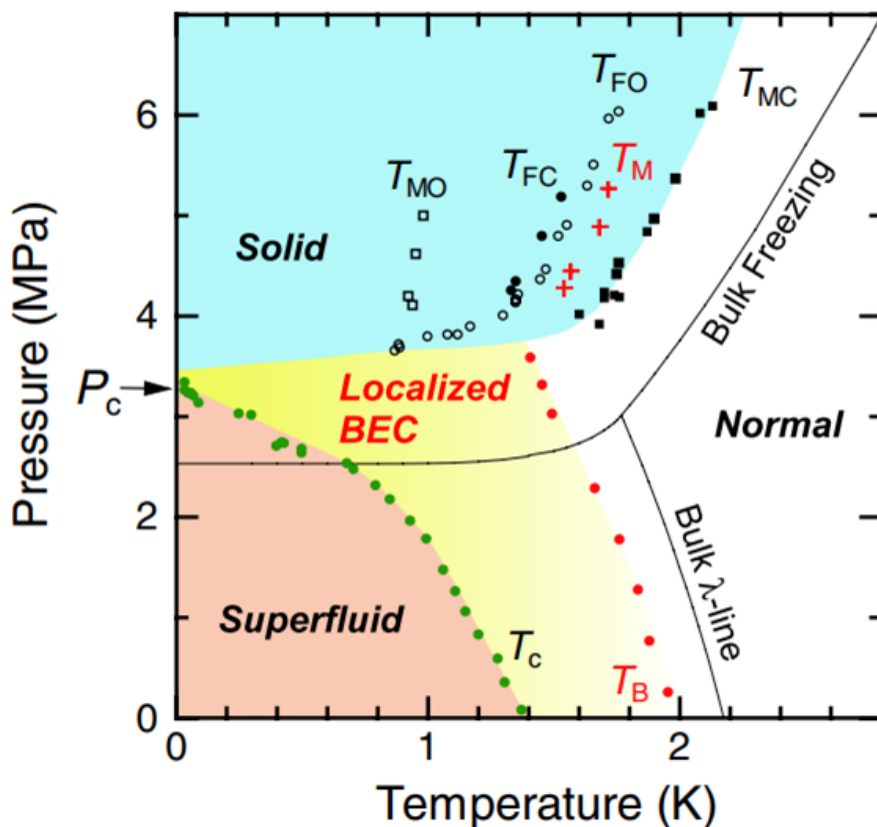


図 2.2. 公称平均孔径 2.5 nm のナノ多孔体 Gelsil ガラス中ヘリウム4の相図。超流動転移温度 T_c は高圧で低温に抑制され、臨界圧力 P_c で絶対零度に達し量子相転移を示す。 T_B と T_M は熱容量のピーク温度である。 T_{FO} と T_{FC} は固化開始、固化終了の温度、 T_{MO} と T_{MC} は融解開始、融解完了の温度である。

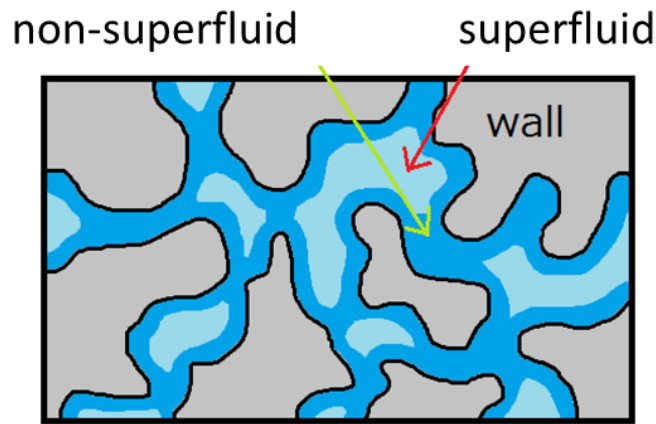


図 2.3. Gelsil 細孔中の局在 BEC 状態の概念図。Gelsil 基板近傍と孔径が狭いところで超流動性が抑制され、それによって局在 BEC が分断されている。

ている。Gelsil ガラスは平均孔径 2-3 nm のナノ細孔がランダムに 3 次元的なネットワークを組んだ不規則な構造を持つ。この不規則構造の中で、孔径が局所的に大きくなっている所で部分的に Bose 凝縮体が成長し、細孔の細くなっている箇所ではこれらの凝縮体が隔てられて孤立していると考えられている。これらの凝縮体の間には超流動を特徴付ける位相の相関が存在せず、巨視的な流動性を失っている。このことからこれらの孤立した凝縮体を局在 BEC と呼び、この非自明な非超流動状態は局在 BEC 状態と名付けられた (図 2.3)。

Gelsil 中ヘリウム 4 の超流動性の研究は、Miyamoto らによる ^4He 吸着系における超流動測定から始まった [41, 42]。彼らは捻れ振動子を用いて超流動特有の非古典的回転慣性の測定を行うことで、Gelsil の細孔表面に吸着したヘリウム 4 薄膜の超流動性を調べ、Vycor 等を用いて過去に得られている多孔体中超流動転移温度 T_c よりもかなり低い T_c を持っていることを明らかにした。これはフルポアの 88% 程度の充填率において 0.725 K と極めて低温であり、Gelsil のサイズ効果が超流動ヘリウム 4 に劇的な変化をもたらしていることを示している。

この結果に対し、Plantevin らは Gelsil 中ヘリウム 4 に対して中性子非弾性散乱実験を行った [43]。バルク超流動ヘリウム 4 の素励起の分散関係は低波数においてフォノンの線形分散が存在し、極大 (マクソン) を持った後、高波数においてロトンの極小を持つという特徴的な分散を示す。Gelsil 中ヘリウム 4 においてもこの分散関係の特徴が見られており、従って Gelsil 中でも素励起の性質は大きく変わらないと解釈される。図 2.4 に示すように、この超流動ヘリウム 4 に特徴的なロトン分散は、Gelsil 中超流動転移 T_c よりも高温、バルク超流動転移温度 T_λ 付近から明確に現れており、非古典的

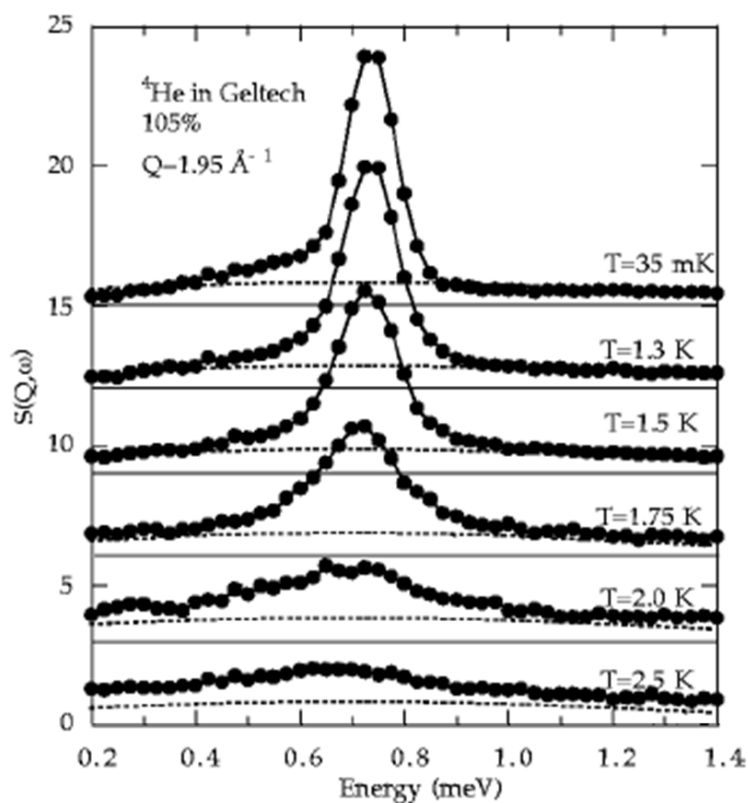


図 2.4. 異なる温度における Geltech(Gelsil) 中ヘリウム 4 の動的構造因子 $S(Q, \omega)$ 。ピークはロトンのスペクトルを示す。

回転慣性として定義された超流動性と Bose-Einstein 凝縮が異なる温度で生じていることを示唆している。

この結果から、 T_c 以上の温度、 T_λ から低温で Gelsil 中のどこかにヘリウム 4 の Bose 凝縮体が成長しているが、それは T_c より高温では巨視的なスケールの超流動性を示すに至っていないと考えられる。このことから、Gelsil 中で孤立して成長した Bose 凝縮体は相互に位相の相関を持たず、超流動を特徴付ける巨視的なスケールに亘る位相コヒーレンスが成立していないという局在 BEC の考えが得られてきた。

Gelsil 中ヘリウム 4 の超流動転移は Yamamoto らによって詳細に調べられている [7]。特に加圧下で Gelsil 中に充填されている液体ヘリウム 4 では超流動転移温度 T_c は 1.4 K から高圧で低温に遷移していき、臨界圧力 $P_c = 3.3$ MPa において絶対零度に至る。また熱容量測定では T_c より高い温度 T_B においてブロードな比熱のピークがみられており、 $T_c < T < T_B$ において局在 BEC 状態が実現している。多孔体中では固化圧力も高圧に変化し、Gelsil では絶対零度において $P_f = 3.7$ MPa まで上昇する [44]。

Gelsil ガラス中ヘリウム 4 の超流動性は捻れ振動子を用いて測定された。捻れ振

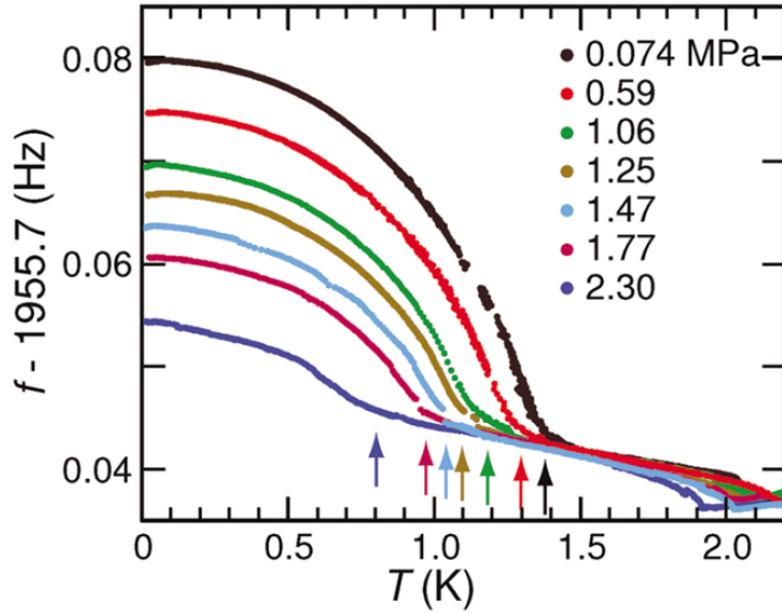


図 2.5. 異なる圧力における捻れ振動子の共鳴周波数の温度依存性。矢印は超流動転移温度 T_c を示しており、その低温における特徴的な共鳴周波数の増加は超流動密度 ρ_s に比例する。

動子とは、プラットフォームに捻れロッドと呼ばれる細い柱を介してサンプルセルを繋いだ構造を持つ実験装置で、サンプルセルに取り付けられた羽根電極に外力を加えることで捻じれ振動を起こす。この捻れ振動子の固有周波数 f はサンプルセルの慣性モーメント I と捻じれロッドの弾性定数 κ を用いて

$$f = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{\kappa}{I}} \quad (2.19)$$

と書ける。この慣性モーメントはサンプルセルにヘリウム 4 を導入することで大きくなるが、ヘリウム 4 が超流動転移すると捻じれ振動に追随しなくなるため、慣性モーメントは超流動密度 ρ_s に比例して減少する。ヘリウム 4 の慣性モーメントの変化による共鳴周波数の変化量 Δf は小さいため $\Delta f \propto \rho_s$ と書ける。従ってこの共鳴周波数 f の温度依存性から $\rho_s(T)$ が求まる。

Yamamoto らはこの捻れ振動子を用いて様々な圧力下において Gelsil 中ヘリウム 4 の超流動密度 $\rho_s(T)$ の測定を行った (図 2.5)。彼らは超流動転移の観測に成功しているものの ρ_s の立ち上がりの温度、すなわち超流動転移温度 T_c 近傍では ρ_s の変化が鈍っており、 T_c を正確には求められず、そのため T_c 近傍の臨界現象については十分な議論ができていなかった。

一方で Eggel らは、Yamamoto らが得た超流動密度の絶対零度に外挿した値 $\rho_s(0)$ の圧力依存性を用いて Gelsil 中超流動ヘリウム 4 の臨界現象を議論した [10, 11]。彼

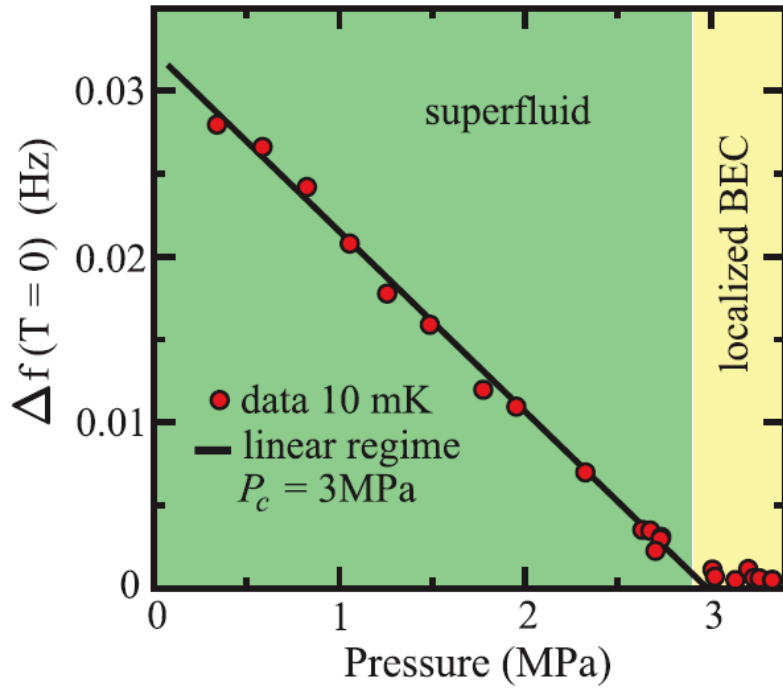


図 2.6. 絶対零度における共鳴周波数の変化量 ($\propto \rho_s(0)$) の圧力依存性。

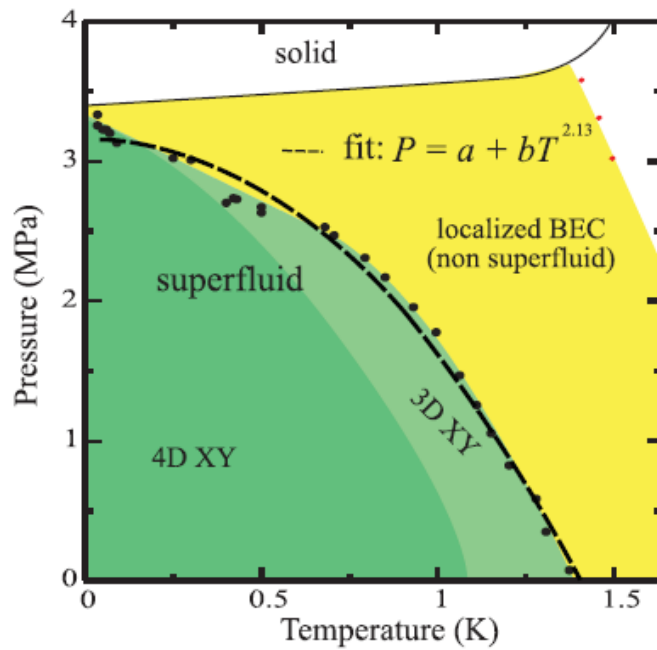


図 2.7. 捻れ振動子の実験で得られた Gelsil 中ヘリウム 4 の相図。破線は $P_c(0) - P_c(T) \propto T^{2.13}$ によるフィッティング曲線。

らの理論では Gelsil の多孔構造の不均一性を考慮した Bose-Hubbard モデルを用いて Gelsil 中ヘリウム 4 の量子相転移の性質を議論している。すなわち孤立した局在 BEC 間をある確率で ^4He 原子がホッピングするというモデルで、各サイトの化学ポテンシャルとサイト間のホッピングの係数に不均一効果を取り入れている。このモデルによって彼らは Gelsil 中超流動転移が、動的臨界指数 $z = 1$ を持つ 4 次元 XY モデルの普遍性のクラスに属すと結論付けた。そこでは絶対零度における超流動密度の圧力に対する臨界指数は $\zeta = (d + z - 2)\nu = 1$ (ν は相関長の臨界指数) となると期待されるが、Yamamoto らの捻じれ振動子の実験から得られた絶対零度における超流動密度 $\rho_s(0)$ の圧力依存性はこの予想に良く合っており、絶対零度においては全圧力の広い領域にわたって量子相転移の性質が現れていることを示している (図 2.6)。但し臨界圧力 P_c は実験値よりわずかに小さく見積もられている。

また Eggel らは Yamamoto らが得た Gelsil 中ヘリウム 4 の超流動転移の相境界線の形状についても議論している。この相境界線の形状は温度-圧力相図において

$$P_c(0) - P_c(T) \propto T^{1/z\nu} \quad (2.20)$$

と書ける。XY モデルの上部臨界次元が $d_u = 4$ であることから、4 次元 XY モデルの臨界指数は平均場理論の値と一致すると考えられ、相関長の臨界指数は $\nu = 0.5$ となる。動的臨界指数は $z = 1$ であったので、結局

$$P_c(0) - P_c(T) \propto T^2 \quad (2.21)$$

となることが期待される。Yamamoto らが得た Gelsil 中超流動転移の相境界線は $P_c(0) - P_c(T) \propto T^{2.13}$ で良くフィッティングできており、これは 4 次元 XY で期待される $1/z\nu = 2$ と良く一致する結果であった (図 2.7)。但しここでも臨界圧力は実験値よりわずかに小さく見積もられており、Eggel らは量子臨界点近傍で揺らぎの効果が強くなることで更に異なる普遍性のクラスに遷移している可能性があるとして結論付けている。

Gelsil 中ヘリウム 4 において量子相転移が現れるのは局在 BEC 状態の実現と関連していると考えられる。Eggel らの理論モデルは局在 BEC 状態をサイトとする不均一性を取り入れた Bose-Hubbard モデルに基づいており、各サイトの局在 BEC が Gelsil 細孔の顕著な有限サイズ効果により量子揺らぎを受けていると考える。量子揺らぎとは Heisenberg の不確定性関係に基づく演算子の非可換性に由来するものであり、Bose 凝縮体の場合では凝縮体粒子数 n_s と位相 ϕ の間に不確定性関係が存在する。すなわち $\Delta n_s \Delta \phi \sim \hbar$ であり、粒子数と位相は同時に定まらない。局在 BEC 状態は Gelsil の細孔構造中でそれぞれ孤立しており、粒子の交換が強く抑制され、位相の相関は存在していない。そのため位相に量子揺らぎを受け、巨視的なスケールにおいて位相コヒーレ

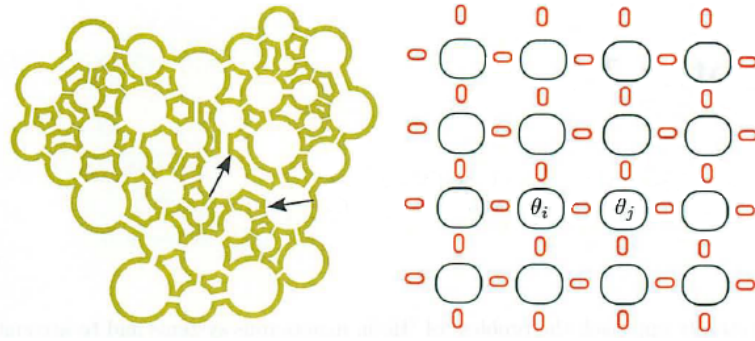


図 2.8. ランダム多孔体中で異なる位相 θ_i と θ_j を持つ局在 BEC の空間配列と Bose-Hubbard 格子模型の概念図 [11]。

ンスを保てなくなっている。低温において巨視的な超流動性を獲得すると、局在 BEC は互いに相関を持って位相のコヒーレンスが確立した状態となると考えられる。

2.5 Bose-Hubbard 模型と 4 次元 XY 普遍性

本節では Egge らの理論考察の詳細を紹介する。Gelsil のような不均一構造を持つ多孔体中のヘリウム 4 の相転移を扱うため、不均一効果を取り入れた Bose-Hubbard 模型を考える。すなわち、図 2.8 のようにランダムな細孔径と配置をもつ多孔体中で成長した局在 BEC をサイトとみなし、サイト毎にランダムな化学ポテンシャル μ_i とホッピング係数 t_{ij} を持つと考える。 i 番目のサイトにおける粒子数 n_i に対して、Bose-Hubbard ハミルトニアンは

$$H = \frac{V}{2} \sum_i n_i(n_i - 1) - \sum_i \mu_i n_i - \sum_{\langle i,j \rangle} t_{ij}(a_i^\dagger a_j + \text{H. c.}) \quad (2.22)$$

と書ける。ここで V はサイト内の粒子間相互作用を表す。

絶対零度の相転移を調べるため、ホッピング項が存在しない場合の基底状態を考える。不均一性がない場合にはハミルトニアンは

$$H = \frac{V}{2} \sum_i n_i(n_i - 1) - \mu \sum_i n_i \quad (2.23)$$

と書いて、基底状態はサイト毎の粒子数 n で決まる。 $-1/2 < \delta < 1/2$ に対して $\mu/V = n - 1/2 + \delta$ と書くと、粒子、またはホールを一つ励起した時の最低エネルギー変化量はそれぞれ $\Delta E_p \sim (1/2 - \delta)V$ 、 $\Delta E_h \sim (1/2 + \delta)V$ となる。ハミルトニアンにホッピング項を加えると、粒子の移動は隣接するサイトにおいて粒子-ホール対を励起することになり、エネルギー $\Delta E = \Delta E_p + \Delta E_h$ が付け加わることになる。ホッピング係数 t が小さいうちは励起は局在しており、基底状態は絶縁相である。 t を大きくする

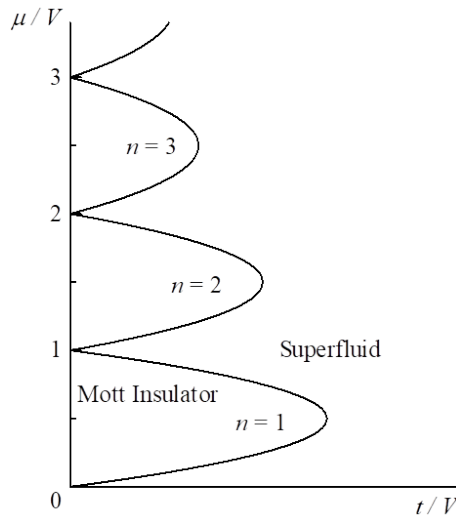


図 2.9. Bose-Hubbard 模型における Mott 絶縁相と超流動相の間の相転移を表す $\mu-t$ 相図。

と励起は非局在化し、絶対零度では Bose-Einstein 凝縮して超流動相となる。 $\mu-t$ の関係は図 2.9 のように、いわゆる Mott の耳たぶ (Mott lobes) と呼ばれる特徴的な相図を描く。

不均一効果を取り入れるために化学ポテンシャルを $\mu_i = \mu + \delta\mu_i$ とし、 $-\Delta < \delta\mu_i < \Delta$ の範囲で一様に分布しているとする。この場合でも $-V/2 < \Delta < V/2$ であれば不均一性がない場合と同様の相図になる。

粒子数期待値 $\langle N \rangle$ 一定の条件で相転移を起こせるのは各 Mott の耳たぶの右端に限られる。これ以外の経路で相転移を起こそうとすると $E_p \neq E_h$ となる粒子-ホール対称性の破れが生じることになる。このとき XY 普遍性における相転移は Mott の耳たぶの端での相転移に限られ、それ以外の点では希薄 Bose 気体として扱う必要がある。そのため、実験では化学ポテンシャルは制御できないため、一般に相転移は XY モデルではないように考えられるが、この粒子-ホール対称性は系の不均一効果によって回復することが示されている。多孔体のナノ細孔の半径が、標準偏差 ΔR の Gauss 分布に従うと仮定すると、各サイトの粒子数分布の幅は $\Delta n^0 \sim 4\pi\nu R_0^2 \Delta R$ となる (ν は液体ヘリウム 4 の粒子数密度、 R_0 は平均細孔半径)。このとき、粒子-ホール対称性の破れは $e^{-2\pi^2(\Delta n^0)^2}$ の因子で変化する。この因子は $\Delta R \sim 0.02$ nm と仮定して見積もると e^{-45} となり、多孔体の不均一構造が粒子-ホール対称性の破れを極めて強く抑制し、Gelsil 中超流動転移は実験で相転移を実現できるような低温においては XY 普遍性によって議論できるということになる。

Gelsil の細孔は 3 nm 程度と極めて小さいが、超流動ヘリウム 4 の相関長は低温では更に小さいため有限サイズ効果は受けず、4 次元 XY の性質を示す。一方で相転移

点では相関長は発散的に大きくなるため、系は 3 次元 XY 臨界性を示すようになると考えられる。すなわち図 2.7 に示すように超流動相-非超流動相の相境界近傍で 3 次元から 4 次元へのクロスオーバーが生じると期待される。このクロスオーバー圧力 P_{co} は指数 (rounding exponent) θ で決まり、

$$P_c(0) - P_{co}(T) \sim T^\theta \quad (2.24)$$

と書ける。この指数 θ は $1/z\nu$ と等しく、 $P_c(0) - P_{co}(T) \sim T^2$ となる。

また量子臨界点から離れた領域では不均一性がない系の $d+z$ 次元性で記述できるが、量子臨界点近傍では不均一効果が顕著になり、ここでも異なる普遍性へのクロスオーバーが期待される。図 2.6 に示すように 3 MPa 以上の高圧において超流動密度の臨界性が $\rho_s \propto |1 - P/P_c|$ から逸脱することや、図 2.7 において相境界線が P_c 近傍で T^2 の曲線から外れることはこのクロスオーバーを示している可能性があるが、現時点では明確な結論は得られていない。

2.6 本研究の目的

ナノ多孔体 Gelsil ガラスに閉じ込められたヘリウム 4 はバルクや他の多孔体中とは大きく様相が異なる。特に量子相転移の出現は極めて顕著であるが、その機構や量子臨界点の性質は明らかでない点も多い。Gelsil 中ヘリウム 4 では局在 BEC 状態が実現していると考えられており、この局在 BEC の概念によって超流動転移の機構が理解できるが、その微視的な様子に関する実験的な観測事実はなく、超流動が顕著に抑制されている理由の説明も得られていない。本研究では Gelsil 中の超流動の流れ実験によって超流動転移の機構を調べ、その包括的な理解を目指す。

Eggel らの理論によれば Gelsil 中ヘリウム 4 の量子相転移は 4 次元 XY モデルで記述される。またその効果は大きく、有限温度の相境界線も 4 次元 XY の臨界性に支配されている。一般に量子系においても有限温度の転移温度近傍では古典的な熱揺らぎが優勢になり、臨界挙動は従来の古典系と同じになってしまう。すなわち今回の場合、有限温度の超流動転移点近傍では 3 次元 XY の振舞いになるはずであるが、その相境界線は 4 次元 XY の臨界指数で決まっている。この不一致は有限温度においても量子揺らぎの効果が顕著に存在していることを示唆している。

Gelsil と同様に局在 BEC 状態を持つ系として、1 次元的なナノ細孔を持つ多孔体 FSM(Folded Sheets Mesoporous Materials) 中ヘリウム 4 の超流動転移が存在する。この系では 1 次元超流動が実現し、朝永-Luttinger 液体性を持つとされている。また超流動転移の際に位相スリップを伴い、超流動転移温度 T_c 直下において特徴的な散逸のピークを持つことが知られている。Gelsil ガラスの場合では超流動ヘリウム 4 は 3 次元的に振舞うが、同様に局在 BEC 状態を持つことから、やはり散逸に何らかの異常を

伴う可能性が考えられ、そうした散逸異常が存在すれば、局在 BEC 状態の機構解明にとって重要な情報となることが期待される。

本研究では、Gelsil 中ヘリウム 4 の超流動転移の機構とその臨界現象を調べるため、Gelsil 中の超流動質量流を伴う流体力学的な共鳴実験を行った。共鳴実験では共鳴周波数と散逸の情報が得られる。共鳴周波数からは超流動密度 $\rho_s(T)$ を見積もれ、超流動転移温度 T_c 近傍の振舞いを解析することで ρ_s の臨界指数が得られる。散逸の温度依存性からは Gelsil 特有の散逸異常を調べ、局在 BEC の概念に基づいたモデルと比較することで、超流動転移の機構を議論する。これらにより、有限温度の T_c における量子相転移の効果を調べ、それらが顕著に存在する機構を明らかにし、また局在 BEC の微視的な性質と Gelsil 中ヘリウム 4 の強い超流動抑制の機構を明らかにする。

第3章 Helmholtz 共振器の原理と製作

本章ではナノ多孔体 Gelsil ガラス中ヘリウム 4 の超流動転移の研究に用いた Helmholtz 共振器について述べる。まず実験の概要を述べた後、実験の準備として Gelsil の前処理と実験装置の製作について説明する。次に実験の条件等を示し、実験装置の詳細な動作原理を議論する。

3.1 実験の概要

Gelsil 中超流動ヘリウム 4 では、捻れ振動子の実験結果をもとに理論研究によって絶対零度の性質は 4 次元 XY モデルで記述されることが示唆されている。山本らの捻れ振動子実験では有限温度の臨界挙動が得られていないため、本研究では超流動転移近傍における超流動密度の温度依存性を実験的に調べ、有限温度における Gelsil 中ヘリウム 4 の超流動臨界挙動を明らかにする。それによって量子相転移の有限温度への効果を明らかにするとともに、局在 BEC 状態を伴う超流動転移の機構に対する新たな知見が得られることが期待される。

本研究では Helmholtz 共振器を用いて、Gelsil 中ヘリウム 4 の超流動流に対応する共鳴の変化を調べた。Helmholtz 共鳴は過去に、ダイアフラム (膜電極) の振動で共鳴を励起する実験 [18, 45, 46, 47] や、圧電素子を用いて音波を励起する実験 [48, 49, 50] など、様々な手法で液体ヘリウム 4 の超流動研究に用いられてきた。本実験では 2 つのダイアフラムを持つ共振器を作成し、実験を行った。基本的な構造は Avenel らや Packard らの実験と同様であるが、ダイアフラムを 2 つにしたことにより、多孔体中の超流動転移温度 T_c 以上でも共鳴周波数が有限に存在するような共鳴を起こすことができる。このことは T_c 直下の振舞いを詳細に調べる上で極めて有利である。またダイアフラムを 2 つにしたことにより共振器の自由度が増え、多数の共鳴が高次のモードに存在する。

実験装置の概略を図 3.1 に示す。液体ヘリウムは実験装置内で内部体積 (~ 0.1 cc) と外部体積 (~ 2.5 cc) に隔てられており、その間を 2 枚のダイアフラムと Gelsil 試料で仕切った構造をしている。ダイアフラムとは柔軟に変形できる膜電極であり、2 枚のダイアフラムは張力が異なるように厚みを変えている。それぞれのダイアフラムには近接して対向する固定電極を設けてあり、厚いダイアフラム ($50 \mu\text{m}$) は流体力学共鳴の駆動に、薄いダイアフラム ($7.5 \mu\text{m}$) は検出に使用する。実験装置には音叉型水晶振動子と静電容量型歪み圧力計が併設されており、バルク液体ヘリウムの状態を実験と同時に知ることができるようになっている。特に音叉型水晶振動子は液体の粘性や密度に敏感に反応するためバルク空間の液体ヘリウムの粘度計として使用でき、温度測定や共鳴実験の参照として役に立つ。

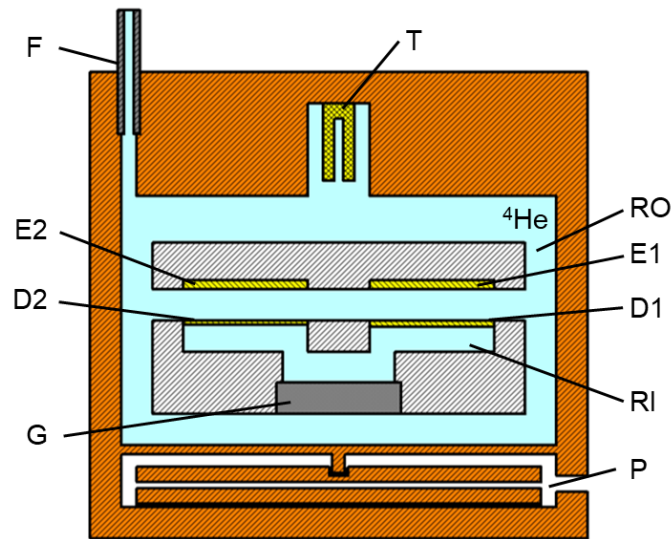


図 3.1. 実験装置の概略図。(D1) (D2) ダイアフラム (E1) (E2) 固定電極 (G) Gelsil (F) ヘリウム導入管 (T) 音叉型水晶振動子 (P) 静電容量型歪み圧力計。液体ヘリウムは (RI) 内部体積と (RO) 外部体積に充填される。

本実験は Gelsil 中ヘリウム 4 の質量流の振動を検出する Helmholtz 共鳴実験であり、検出用ダイアフラムの変位が液体ヘリウム 4 の質量流に対応する。共振器の共鳴周波数は Gelsil の流路の流体力学的なインピーダンスに対応して変化する。常流動状態では液体は粘性のためにほとんど Gelsil 中を流ることができず、共鳴に寄与しない。超流動状態では二流体モデルに基づいて超流動密度に応じた質量流が Gelsil 中を透過できるため、共鳴周波数は超流動密度を反映した変化を示す。本研究ではこの共鳴周波数の変化から超流動密度の温度依存性を得る。

本実験装置は複数の共鳴モードを持ち、これは少なくとも 2 つの異なる機構からなる。1 つは実験セル内のバルク液体ヘリウムを介して 2 枚のダイアフラムの振動が結合した連成振動モードであり、Gelsil 中ヘリウム 4 が超流動でなくても有限の共鳴周波数を持つ。Gelsil 中ヘリウム 4 が超流動転移すると、Gelsil によって隔てられていた 2 つの空間のバルク液体ヘリウムが Gelsil を通って流れることができるようになり、共鳴周波数が低温に向かって増加する。これは Gelsil 中を通過して一部の液体ヘリウムが連成振動から逃れるために、連成振動系の全質量が実効的に減少するためである。一方で最低次の共鳴モードは Gelsil 中を超流動ヘリウム 4 が振動することによる共鳴で、Gelsil 中超流動転移温度以下で低温に向かって共鳴周波数がゼロから成長する。本実験装置は更に多数のモードを持つが、高次のモードは本質的には連成振動モードに属し、実験セルの形状の異方性等の要因で多様な共鳴モードが実現している。共鳴周波数については 3.4 節で改めて議論する。

本実験では公称孔径が異なる 2 種類の Gelsil 試料を使用して共鳴を調べ、その振る舞いを比較した。Gelsil 試料はそれぞれ平均孔径が公称値 2.5 nm、3.0 nm である。次節で述べるようにこの公称値は実際に即しておらず、3.0 nm の試料の方が平均孔径は小さいという結果が得られている。試料を区別するために以下ではそれぞれ試料 A、試料 B と呼び分けることにする。

3.2 Gelsil 試料の前処理と細孔分布評価

多孔体試料には大気中の気体分子が吸着しやすく、特に水分子は単なる脱気やヘリウム置換では取れないため、加熱中で脱気する必要がある。また窒素吸脱着測定では多孔体試料の表面積や平均孔径、細孔分布といった情報が得られる。本節では Gelsil 試料の前処理の方法と窒素吸脱着測定について述べる。

Gelsil 試料の前処理

本研究では公称平均孔径 2.5 nm、3.0 nm の異なる 2 種類の Gelsil 試料 A と B として、丸棒の試料から切り出した円板を使用する。使用した Gelsil 試料の寸法は、それぞれ公称孔径 2.5 nm の試料 A では $\phi 9.1$ 、厚み 1.0 mm、孔径 3.0 nm の試料 B では $\phi 9.1$ 、厚み 2.1 mm であった。それぞれの試料は実験前に水分子をはじめとする不純物を取り除くために一週間程度、150 °C で加熱しながら真空脱気を行った。その後窒素吸脱着測定を行って細孔分布を調べた後、実験装置への取り付けまで引き続き脱気を行った。この加熱脱気処理には日本ベル株式会社の Belprep-VacII を使用した。

細孔分布測定

Gelsil 試料の細孔分布を調べるために、日本ベル株式会社の Belsorp-miniIII を用いて窒素吸脱着測定を行った。これは窒素温度における Gelsil 試料への気体窒素の物理吸着特性を利用し、試料のメソ細孔分布などを調べる手法である。実験的には吸脱着平衡圧力と飽和蒸気圧の比である相対圧力と吸着量を測定し、その特性から比表面積(質量あたりの細孔表面積)を調べる BET(Brunauer Emmett Teller) 解析、細孔径の分布を調べる BJH(Barrett Joyner Halenda) 法など、様々な解析方法が存在する。本研究では細孔径が重要になると考えられるので、特に BJH 解析 [51] を行った。図 3.2 に BJH 解析の結果を示す。図 3.2(a) は吸着過程、(b) は脱着過程における等温曲線の解析結果である。試料 A と試料 B の差はあまりなく、試料 B の方が吸着・脱着のいずれにおいても僅かに小孔径側に分布を持っている程度であった。異なるバッチの試料ではあるが、窒素吸脱着測定から得られた細孔分布には有意な差はないようである。Gelsil 試料の細孔径としては、BJH 解析結果の細孔ピーク径を採用する。細孔ピーク径は両方の試料で一致しており、吸着過程では 2.97 nm、脱着過程では 3.71 nm と得

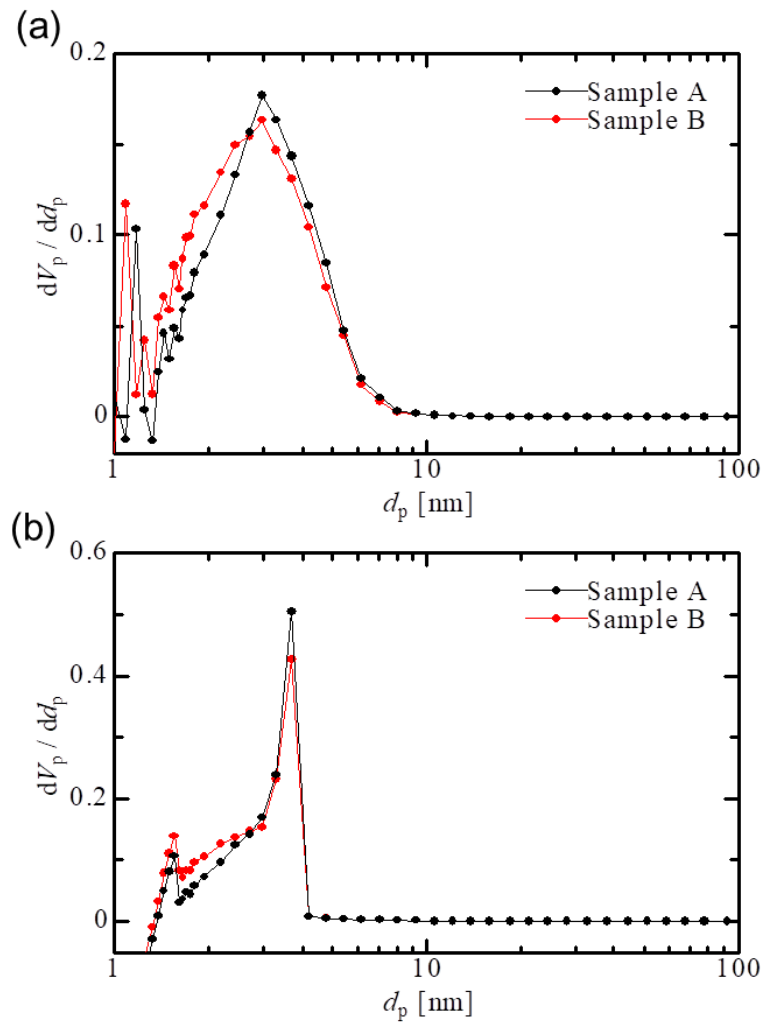


図 3.2. 窒素吸脱着測定から得た BJH 解析の結果。(a) 吸着等温線と (b) 脱着等温線の解析結果である。

られた。一般に BJH 解析では脱着のピーク径は不均一な細孔分布に対してくびれの箇所 (ボトルネック) の孔径に対応すると考えられているが、今回の場合に吸着過程より脱着過程のピーク径の方が大きくなっている原因は明らかではない。本研究においては Gelsil の実効的な細孔径は吸着 BJH 解析の結果を採用して 3 nm と考える。

3.3 実験装置の製作

実験装置は主に液体ヘリウムを低温に保持するための容器と、その中で共鳴を起こす共振器部分からなる。ヘリウム 4 の固化圧力は低温でおよそ 2.5 MPa であり、本

実験は固化圧力直下の圧力まで昇圧する可能性があるため、ヘリウム容器は耐圧容器として作成した。ヘリウム容器の底面は静電容量型歪み圧力計となっている。圧力計ダイヤフラムを含む部品はベリリウム銅で、その他の部品は熱伝導を良くするために銅で製作している。共振器部分の構造体は内外の体積間の熱緩和を低減するためエポキシ樹脂の一種である Stycast1266 で製作した。Stycast1266 は二液性の接着剤で、混合後に脱気して気泡抜きし、反応熱による熱暴走を防止するため水浴中で固化すると構造材として使用できる。Gelsil と Stycast1266 の熱収縮率の違いによる Gelsil の割れ等を防ぐため、MACOR(Machinable Glass Ceramic) を介して Gelsil を取り付ける。共振器には 2 枚のダイヤフラムが接着されており、対向する構造体には 2 つの固定電極を接着しておく。ダイヤフラムと固定電極は後述の条件でポリイミド樹脂の一種であるカプトンのフィルムに金属膜を蒸着して作成した。共振器と対向する構造体は 50 μm のカプトンシートをスペーサーとして 3 本の M2 のネジでヘリウム容器の蓋に固定する。配線は同軸線のハーメチックシールを用いてヘリウム容器の蓋から外部と導通を取る。ヘリウム容器と蓋の間の気密はインジウムシールで確保する。

ダイヤフラムと固定電極の作成

ダイヤフラムと固定電極は共にカプトンシート上に金属を蒸着することで膜状の電極として作成する。電極部分は $\phi 8.0$ の円形とし、そこから幅 3.0 mm のタブを伸ばした形で蒸着する。ダイヤフラムの場合は電極の外周部を構造体に接着することで電極部分は自由に変位することができるようにし、固定電極の場合は電極全面を構造体に接着することで外力がかかっても変位しないようにしておく。固定電極と検出用ダイヤフラムには厚み 7.5 μm のカプトンシート、駆動用ダイヤフラムには厚み 50 μm のカプトンシートを使用する。

金属蒸着には株式会社 ULVAC の小型真空蒸着装置 VPC-260F を使用した。蒸着されるカプトンシートは天板にマスクを被せてカプトンテープで固定する。マスクは 1 mm のアルミニウム板を加工して作成した。天板は温度計とヒーターが取り付けられており、基板加熱することで蒸着した金属膜の質の向上が期待できる。本研究で使用する膜電極は 300 $^{\circ}\text{C}$ で加熱した状態で作成した。

固定電極と厚いダイヤフラムは金を、薄いダイヤフラムは鉛を蒸着する。金は蒸着において一般的に使用される金属であるが、薄いダイヤフラムは SQUID を使用した実験(補遺 F 参照)に拡張する可能性を考慮して鉛を使用している。金蒸着ではカプトンシートへの付きを強くするため、下地にクロムを 50 nm 蒸着しておき、その上に金を 120 nm を蒸着する。鉛蒸着ではアルミニウム 50 nm の上に鉛を 250 nm 蒸着する。

7.5 μm のカプトンシートに金属膜を蒸着した様子を図 3.3(a) に示す。図に示すように 6 つの電極を同時に作成し、切り取って使用する。蒸着したカプトンシートを図

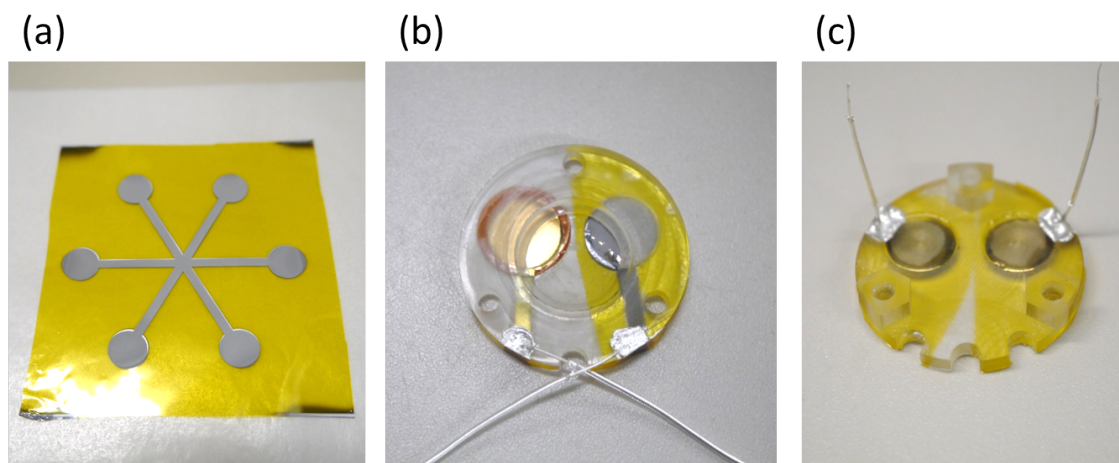


図 3.3. ダイアフラムの製作と接着の一例を示した写真。(a) カプトンシートに蒸着した電極。(b) ダイアフラムを実験セルに接着し、配線を施した様子。(c) ダイアフラムを接着して固定電極としたもの。

3.3(b) と (c) にそれぞれ示すように、機械工作で作成した Stycast1266 の構造体に接着することでダイアフラムと固定電極とする。ダイアフラムは液体ヘリウムの質量流によって変位するようにするため、電極部分を避けて縁の部分接着する。一方で固定電極は電圧の印加によって変形しないように、構造体に全面を接着する。それぞれの導通を確保するために円形の電極部分からタブを伸ばしておき、構造体の端で折り曲げて導電性エポキシ樹脂 (エコボンド) を流し込み、同軸線の芯線を挿して固定する。同軸線他端は実験セルの蓋に取り付けられたハーメチックシールポートにはんだ付けして、セルの外部と導通を取れるようにする。図 3.3(b) に示す構造体の中央の窪みには多孔体を取り付ける。

Gelsil 試料の接着

Gelsil 試料の接着はグローブバッグを用いて気体ヘリウム雰囲気中で行う。Gelsil 試料の接着の様子を図 3.4 に示す。Gelsil 試料と実験セルの熱収縮率の違いにより低温で試料の割れや剥離による液体ヘリウムのリークが懸念されるが、これを避けるために Gelsil 試料は直接 Stycast1266 の構造に接着するのではなく、比較的熱収縮率が近い MACOR のリングを介して接着した。MACOR は機械工作が可能なセラミックスの一種で、注意して工作すれば欠けや割れが比較的生じにくい。接着には Stycast1266 を使用したが、Gelsil 試料の細孔に染みないように、混合後時間を置いて粘度が高くなった状態のものを使用した。MACOR と実験セルの接着には Stycast2850FT を使用した。

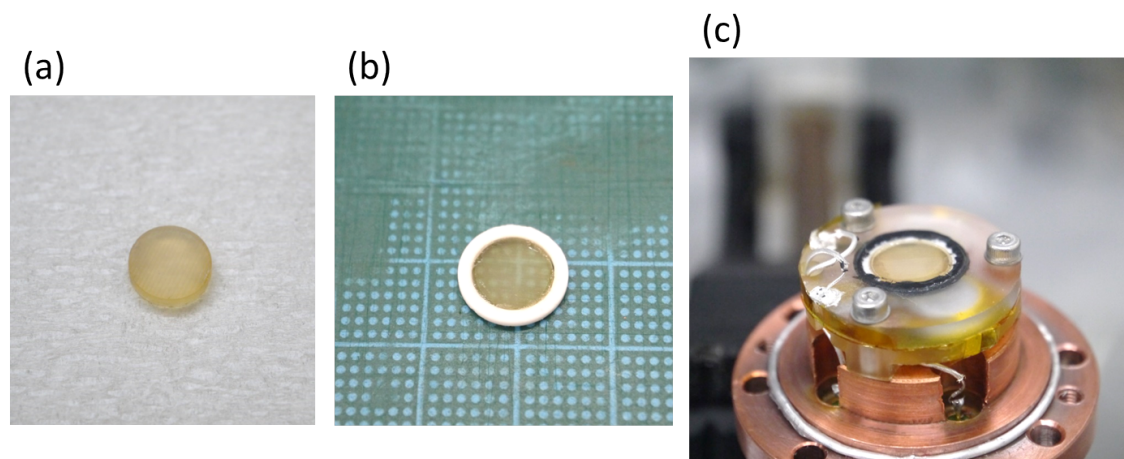


図 3.4. 実験に用いた多孔質ガラスの一例を示した写真。(a)Gelsil の円板試料。(b)Gelsil を Macor のリングに接着した様子。(c)Gelsil を実験セルに接着して全体を組み立てた様子。

図 3.4(c) に実験装置全体を組み立てた様子を示している。これは図 3.1 とは上下逆さになっており、ヘリウム 4 容器の蓋が下部にあり、そこに固定電極、スペーサー、ダイヤフラムの順に構造体を重ねて M2 のネジ 3 本で蓋に固定している。スペーサーは $50\ \mu\text{m}$ のカプトンシートにダイヤフラムの運動を阻害しないようダイヤフラムより一回り大きな穴を開けて、また液体ヘリウムがダイヤフラムと固定電極の間に通じるように切り込みを入れて、構造体の外周に合わせて円形に切り取ったものである。2 対のダイヤフラムと固定電極の導通は同軸線を介して蓋のハーメチックシールにはんだ付けにより確保している。

容量型歪み圧力計

容量型歪み圧力計は液体ヘリウム容器の壁のうちの一面の圧力による微小変形を静電容量測定によって検出することで圧力を調べる機構である。通常は圧力計のみを用意してキャピラリで実験装置に接続することが多いが、この方法ではキャピラリに圧力勾配が存在する可能性があり、理想的ではない。そのため本研究では実験装置である液体ヘリウム容器の底面をそのまま圧力計に利用した。これにより冷凍機内で過度にスペースを占有することなく圧力計の電極を大きくすることが可能であり、感度も高くすることができた。

圧力計の変形部分(ダイヤフラム)は、圧力に対して十分変位するよう薄くしつつ、高圧でも耐えられるよう Young 率が高いベリリウム銅を使用した。ベリリウム銅は機械工作の後、適切に熱処理を施すことで Young 率が上昇する。これは合金中で分散して存在していたベリリウムがまとまる(析出する)ことで、金属中の転位の運動を妨げ

るためである。圧力計のダイヤフラムに圧力差 ΔP がかったときの変位 z は

$$z = \frac{3(1 - \sigma^2)r_d^4}{15Et^3}\Delta P \quad (3.1)$$

と書ける。ここで σ と E はベリリウム銅の Poisson 比と Young 率、 r_d と t はそれぞれ変形部分の半径と厚みである。この時ダイヤフラムにかかる最大応力 γ は

$$\gamma = \frac{3r_d^2}{4t^2}\Delta P \quad (3.2)$$

となる。安全係数を 3 として降伏応力 F が $F \geq 3\gamma$ となるように設計すると、ダイヤフラムの厚みとして

$$t \geq \sqrt{\frac{9r_d^2}{4F}\Delta P_{\max}} \quad (3.3)$$

なる条件を満たせば良いことになる。本研究では最大圧力差 ΔP_{\max} は 5.0 MPa である。ダイヤフラムの厚みが増すと変位は小さくなり、圧力に対する感度が減少するため、上記の条件を満たすような範囲で可能な限り薄くするのが良い。圧力を加えた際の変位は電極間の静電容量を通して測定する。差圧ゼロの場合の静電容量を C_0 とすると、圧力差 ΔP と電極間の静電容量の間には

$$\frac{1}{C} = \frac{1}{C_0} - \frac{3(1 - \sigma^2)r_d^4}{15Et^3\epsilon S}\Delta P \quad (3.4)$$

となる。係数と C_0 は低温での実験時に室温の圧力計と平衡状態において実験的に決定する。

圧力計の構造として、ダイヤフラムと実験装置の液体ヘリウム容器を兼ねたベリリウム銅の部品、静電容量を測定するための対向する 2 枚の電極、それらを保持するための底蓋を機械工作で作成した。2 枚の電極は対向面を平滑にするために紙やすり (4000 番まで) で研磨しておく。側面には穴を設けておき、同軸細線の芯線をはんだ付けする。片側の電極は底蓋に、絶縁のため航空便箋を挟んで Stycast2850FT で接着する。ダイヤフラムの中央には変形を阻害しない程度の小さな突起を設け、他方の電極の中央に一回り大きく開けた穴にはめ込んで接着するようにする。この穴には絶縁のため Stycast1266 を流し込んでおき、ダイヤフラムの突起と同程度の穴を開け直しておく。この可動電極の接着の際には、実験装置を密封して気体ヘリウムを高圧で封入しておき、ダイヤフラムが変位した状態に保っておく。可動電極の接着と同時に底蓋を実験装置に接着することで、対向する電極間の平行度を確保する。この際、電極間に塵や埃などの異物を嚙まないようブローで払っておく。

本研究では実験装置は絶対零度におけるバルクヘリウム 4 の固加圧力である 2.5 MPa までで実験を行うが、その圧力までで圧力計が安定して動作するために、接着の

時点では 5.0 MPa の圧力をかけておく (これが最大圧力 ΔP_{\max} となる)。高圧をかけた状態で電極の接着を行うことで、圧力を抜いた時に電極が離れ、電極を平行に保ったまま近接した状態に保持される。概ね 4 MPa 程度から電極の間に導通が生じるようになるため、安全のため接着時には 5 MPa と十分な高圧を与えておく。

音叉型水晶振動子

水晶振動子は一般に高い Q 値を有し、液体ヘリウム中に置くことで液体の物性値の温度変化を鋭敏に検出することができる。本研究では株式会社大真空の音叉型水晶振動子 (quartz tuning fork)DT-38 を実験セルのヘリウム容器内に設置しておき、バルクの液体ヘリウムの超流動転移に伴う粘性散逸の温度・圧力変化を調べ、ヘルムホルツ共鳴の参照信号として利用する。

超流動ヘリウム中の音叉型水晶振動子の共鳴の変化は良く調べられている [52]。真空中の共鳴角周波数 ω_{vac} は

$$\omega_{vac} = \sqrt{\frac{k}{m_{vac}}} \quad (3.5)$$

$$k = \frac{E}{4} W \left(\frac{T}{L} \right) \quad (3.6)$$

$$m_{vac} = 0.24267 \rho_q LWT \quad (3.7)$$

と書ける。ここで E と ρ_q は水晶振動子の弾性率と密度であり、 L と T 、 W は音叉のそれぞれの足の長さ、幅、厚みである。この水晶振動子を液体ヘリウム中に置くと、共鳴周波数 ω_0 と減衰率 γ はそれぞれ

$$\omega_0^2 = \omega_{vac}^2 \left(\frac{m_{vac}}{m_{vac} + m} \right) \quad (3.8)$$

$$\gamma = \gamma_{vac} \left(\frac{m_{vac}}{m_{vac} + m} \right) + \frac{b}{m_{vac} + m} \quad (3.9)$$

$$m = \beta \rho V + B \rho S \delta \quad (3.10)$$

のように実効的な質量の変化として影響を受ける。ここで ρ は液体の密度、 S と V は音叉の表面積と体積、 β と B は構造に依存する係数である。また、

$$\delta = \sqrt{\frac{2\eta}{\rho\omega}} \quad (3.11)$$

は粘性侵入長であり、角周波数 ω が高いほど粘性によって振動に追従する距離は小さくなる (η は粘性係数)。液体の存在による共鳴の変化は、排除体積分の液体ヘリウムの質量と粘性抵抗による粘性侵入長分の液体の質量が加わった補正によって記述され

る。これらから、共鳴周波数 f_0 と半値幅 Δf は

$$\left(\frac{f_{\text{vac}}}{f_0}\right)^2 = 1 + \frac{\rho}{\rho_q} \left(\beta + B \frac{S}{V} \sqrt{\frac{\eta}{\pi \rho f_0}} \right) \quad (3.12)$$

$$\Delta f = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\rho \eta f_0}{\pi} \frac{CS}{m_{\text{vac}}}} \left(\frac{f_0}{f_{\text{vac}}}\right)^2 \quad (3.13)$$

となる。 C は構造に依存する係数である。粘性係数 η は超流動体の全体としての粘性係数であり、常流動成分の粘性係数を用いる場合には $(\rho_n/\rho)\eta$ と考えればよい (ρ_n は常流動密度)。

通常、水晶振動子自体の共鳴周波数 f_{vac} に比べて液体による共鳴周波数の変化は小さい。このことから近似的に

$$f_0 = f_{\text{vac}} \left(1 + \alpha_1 \rho + \alpha_2 \sqrt{\eta \rho} \sqrt{1 + \alpha_1 \rho} \right)^{-1/2} \quad (3.14)$$

$$\Delta f = \alpha_3 \left(\frac{f_0}{f_{\text{vac}}}\right)^2 \sqrt{\eta \rho} \quad (3.15)$$

と書ける。ここで諸々の係数を $\alpha_{1,2,3}$ と置き直した。測定では共鳴周波数と振幅を測定するが、振幅 A は Q 値に比例する ($A \propto Q = f_0/\Delta f$)。従って、

$$\frac{1}{Af_0} = \sqrt{\eta \rho} \quad (3.16)$$

となり、実際の実験セル内のバルク液体ヘリウムの粘性を知ることができる。

バルク液体ヘリウムの粘性係数や密度を含む種々の物性値は、その温度・圧力依存性が良く調べられており、値として参照することができる。しかしながら実際の実験セルは細管でヘリウムを導入するため、実験セルはほぼ孤立した状態あり、実験セル内の圧力は密度を一定に保つように温度変化する。このことから実際の粘性係数を参照した値から得るのは困難であるので、本研究では音叉型水晶振動子を参照信号を得るために使用している。水晶振動子を実験セル内に搭載しておく、ヘリウムの出入りの確認や超流動転移の確認など実験的に有用であるが、本研究では Helmholtz 共鳴の散逸の温度変化の考察を正確に行う上でも大きな役割を果たした。

3.4 実験原理 : Helmholtz 共鳴

本節では Gelsil 中ヘリウム 4 の超流動測定の方法と原理を説明する。本研究で用いた実験装置は Helmholtz 共振器になっており、Gelsil が共振器の開口部に相当し、Gelsil 中の液体ヘリウムの振動を共鳴として検出する装置になっている。同様の Helmholtz 共振器が過去に用いられているが、本研究ではダイアフラムを共振の駆動

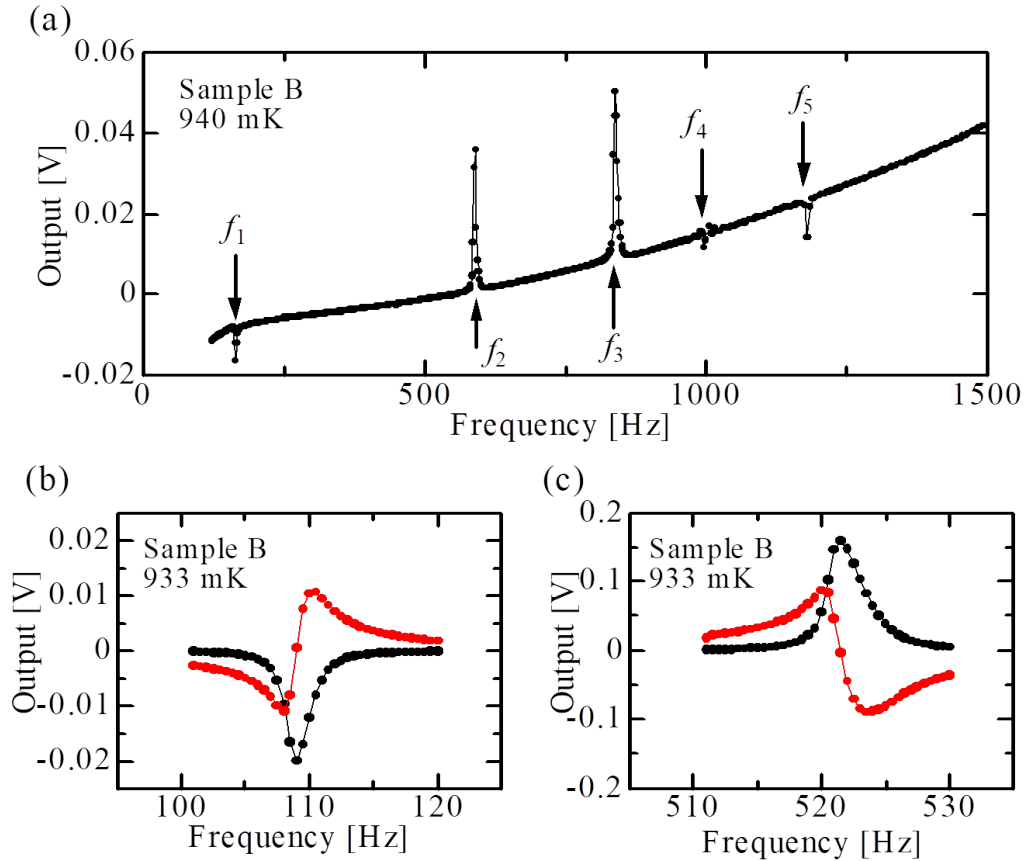


図 3.5. 3.0 nmGelsil 試料 (試料 B) における共鳴曲線の例。(a)0.1 MPa、940 mK における共鳴スペクトル。低周波から順に f_i ($i = 1, 2, \dots$) で示された 5 つのピークは全て力学的共鳴である。また更に高周波数の領域では多数の共鳴が見られる。(b)933 mK における R_1 モード、(b) R_2 モードの共鳴の詳細なスペクトル。黒いプロットは入力交流電圧と同位相の電圧、赤いプロットは 90° ずれた位相の電圧を示している。

用と検出用に分けることでクロストークを抑えている。また重要な点は、これによって共振器に充填された液体ヘリウム 4 を介して 2 つのダイアフラムが連成振動を起こすことであり、これによって多様な共鳴が見られ、また超流動転移温度 T_c 以上の温度においても共鳴周波数が有限に存在するため、 T_c 近傍の共鳴の様子が詳細に調べられるようになっている。

図 3.5 に、共鳴特性の一例を示している。ここに示すように、典型的に 1500 Hz 以下に少なくとも 5 つの共鳴が、2 kHz 以上では多数の共鳴が観測される。この共鳴を低周波数から順に R_i ($i = 1, 2, \dots$) とし、その共鳴周波数を f_i と書くことにする。この共鳴のうち最低次のモードの共鳴周波数 f_1 のみが Gelsil 中超流動転移温度 T_c に向かって急激に減少して 0 に近づき、散逸は T_c で発散的に大きくなって T_c 以上の高温では共鳴が消失する。高次のモード $i \geq 2$ でもやはり共鳴周波数は T_c に向かって単調

に減少していくが、 T_c 以上でも共鳴周波数 f_i と散逸は有限に留まる。これらの共鳴はバルク超流動転移点 T_λ を超えても存在しているが、共鳴周波数 f_i と散逸の温度依存性にバルクと Gelsil 中の液体ヘリウム 4 の超流動性が反映される。詳細は次章で議論する (図 4.1、図 4.2)。

Gelsil 中ヘリウム 4 の超流動転移温度 T_c 以上の温度では、Gelsil 中の液体ヘリウム 4 はその粘性のためほとんど動くことができない。そのため共振器の内外のバルク体積は Gelsil で分断されることになる。この状態では共振器の振動は Gelsil 中ヘリウム 4 の運動によるものではなく、共振器の内外に閉じ込められたバルク体積の液体ヘリウム 4 を介して伝播する 2 つのダイアフラムの間の連成振動である。すなわち駆動ダイアフラムに与えられた外力がバルク液体ヘリウム 4 を介して検出ダイアフラムに伝播するという描像である。この連成振動はバルク液体ヘリウム 4 の超流動転移に影響を受ける。これは超流動転移に伴い実効的にバルク液体ヘリウム 4 の粘性が急激に減少することで、共振器全体がバルク液体から受ける粘性損失が減少し、実効的な負荷質量が減少するためである。これは音叉型水晶振動子の振舞いと同様に考えられる。Gelsil 中ヘリウム 4 が超流動転移すると共振器の内外に分断されていたバルク体積の液体ヘリウム 4 が互いに行き来することができるようになることで、連成振動に追従するバルク液体の質量が実効的に減少するために特徴的な共鳴の変化が生じる。すなわち外力による駆動ダイアフラムの変位を検出ダイアフラムに伝えるバルク液体ヘリウム 4 の一部が Gelsil を通って外部に流れ出し、その質量分だけ共振系の質量が減少するためである。また Gelsil 中超流動転移点以下の温度では Gelsil における質量流そのものが振動するモードが存在する。このモードが最低次モード R_1 であり、 $i \geq 2$ のモードは全て連成振動モードである。

連成振動基本モード R_2 の共鳴周波数 f_2

$i \geq 2$ の高次のモードは 2 つのダイアフラムと、その間を満たす液体ヘリウム 4 の連成振動によるモードである。 R_2 モードがこの連成振動の基本モードであり、バルク空間の液体ヘリウム 4 が非圧縮なモードである。より高次のモードはそれぞれの起源が明確ではないが、実験セルの構造の異方性等の詳細とバルク液体ヘリウム 4 の圧縮率の寄与が入った共鳴であると推察される。高次のモードの共鳴の機構はこのような複雑さを含むため、本研究では基本モードである R_2 モードを主に用いて実験を行っているが、共鳴の温度特性は高次のモードでも本質的には同等であると考えられる。

振動の様子を図 3.6(a) に示す。バルク液体ヘリウム 4 の圧縮率が無視できるとき、2 つのダイアフラムの変位とバルク体積の液体の実効的な変位は全て同じになる。この変位を x とし、連成振動系の質量 M 、2 つのダイアフラムの張力を $\sigma_{1,2}$ ($1,2$ はそれぞれ駆動、検出ダイアフラム) とすると、共振器の連成振動モードを複数のばねで繋がれ

た質点系の連成振動に簡単にモデル化できる。2つのダイアフラムの変位が同じであるので、図 3.6(b) のようにばねが並列に接続された状態に対応して、外力 $F(t)$ に対する運動方程式は

$$M\ddot{x} + \gamma\dot{x} + 8\pi(\sigma_1 + \sigma_2)x = F(t) = F \cos(\omega t) \quad (3.17)$$

と書ける。この質量 M にはバルク液体ヘリウム 4 の粘性による負荷質量を含むが、Gelsil 中ヘリウム 4 の超流動転移温度 T_c 程度の温度以下ではほとんどバルクの実効的な粘性は消失しているため、この負荷質量は無視できる。そのため質量 M は変位 x を持つ共振器内のすべての要素の質量と考えられ、共振器内外のバルク体積のヘリウム 4 の質量 ρV (V は全バルク体積) と等しい (ダイアフラムの質量は十分小さいため無視している)。減衰率 γ は液体ヘリウム 4 の粘性抵抗とダイアフラムの内部摩擦を含む。このモデルはバルク体積の液体ヘリウム 4 が非圧縮であるとした場合に成り立つが、実際に液体ヘリウムの実効的なばね定数 κ は圧縮率 χ を用いて

$$\kappa = \frac{A_d^2}{\chi V} \quad (3.18)$$

として見積もれて、これはダイアフラムのばね定数 $8\pi\sigma_{1,2}$ のいずれと比べても十分大きい。ここで A_d はダイアフラムの面積であり、2つのダイアフラムで設計値として同じ値を持つ。ダイアフラムの張力 $\sigma_{1,2}$ は、固定電極から直流電圧を印加した時の静電容量の変化を測定することで

$$C(V) = C(0) + \frac{C^4(0)}{16\pi\epsilon^2 A_d^2 \sigma_i} V^2 \quad (3.19)$$

の関係を用いて実験的に調べることができる。 ϵ は液体ヘリウム 4 の誘電率である。このことから、連成振動の基本モードは主に2つのダイアフラムの張力で決まるモー

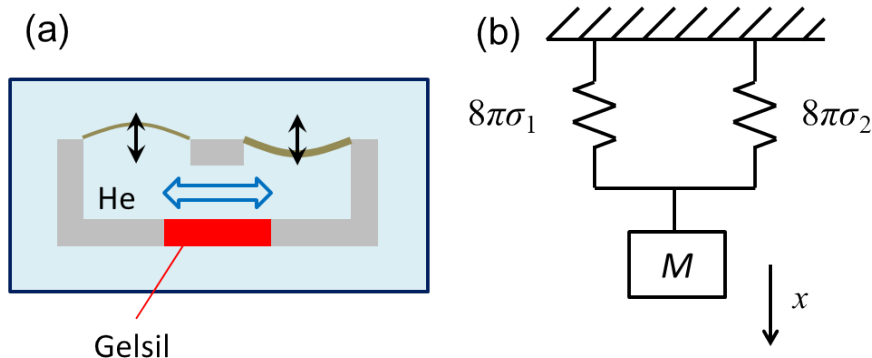


図 3.6. 連成振動の基本モードの (a) 概念図と (b) 質点系のモデル

ドであり、質点系の連成振動の類推から、基本モードは液体ヘリウムの圧縮性が全くない振動をすすると考えられる。

Gelsil 中ヘリウム 4 が超流動転移すると、Gelsil によって分断されていた共振器の内外の液体ヘリウム 4 の間で超流動質量流が生じ、その結果共振に追随する液体ヘリウム 4 の質量が Gelsil 中の超流動密度に比例して減少する。この時の共振系の実効的な質量は $M = \rho V - \alpha \rho_s(T)$ (ρ_s は Gelsil 中液体ヘリウム 4 の超流動密度、 α は構造の詳細に依存する係数) と書けるので、運動方程式 (3.17) から T_c 以下の温度において共鳴周波数 f_2 は

$$f_2 = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{8\pi(\sigma_1 + \sigma_2)}{\rho V - \alpha \rho_s(T)}} \quad (3.20)$$

となる。厳密には減衰振動系の共鳴周波数は固有周波数とは異なるが、 T_c 以下で減衰率 γ の影響は十分小さいため無視している。もし超流動速度が臨界速度に達していると超流動流に散逸が生じ、実効的な粘性を持っているものとして扱う必要があるため共鳴周波数の変化は鈍ることになるが、本研究においては超流動速度は臨界速度に達しておらずこの式で共鳴周波数が良く記述できる。

共鳴の Q 値は共鳴周波数と半値幅 Δf の比 $Q = f_2/\Delta f$ で定義される。半値幅は $\Delta f = 2\pi\gamma/M$ であるので、減衰率を表しており、従って共鳴の散逸は Q^{-1} で評価される。この連成振動モードの場合、散逸は T_λ と T_c でそれぞれ特徴的な減少を示す。 T_λ はバルク液体の超流動転移によって共振器が受ける粘性抵抗が減少するため、 T_c での減少は多孔体中を液体ヘリウムが透過することで共振器に閉じ込められていたバルク液体ヘリウム 4 の運動の制限が減少し、共振器全体として散逸が減少するためである。

連成振動の基本モードでは 2 つのダイアフラムの変位 x は T_c 以上の温度では一致しているので、このモードは駆動ダイアフラムと検出ダイアフラムが同位相で振動する (図 3.1 において上下反対向きに振動する) モードである。

最低次モード R_1 の共鳴周波数 f_1

最低次モード R_1 は純粋に Gelsil 中の質量流に起因する共鳴であり、この共鳴はダイアフラムが一つの場合で過去に調べられている Helmholtz 共鳴と同じ共鳴である [18, 47]。先行研究では、バルク液体ヘリウムの圧縮率は典型的にダイアフラムの張力に比べて非常に小さいため無視し、ダイアフラムの変位は全て細孔中の超流動流による体積変化であると考えられる。本研究の場合はダイアフラムが 2 つ存在するが、それらの変位はやはり Gelsil 中の超流動流によるものであり、単に質量流の寄与が 2 つのダイアフラムの変位に張力の比で分配される (図 3.7(a))。また質点系の等価モデルは図 3.7(b) のように 2 つのばねが直列に接続されたものであり、質量 M はこのモードの場合 Gelsil 中で振動する実効的な液柱の質量となる。

R_1 モードの共鳴周波数 f_1 は流体力学インダクタンス L と流体力学キャパシタンス C を用いて、電気回路における LC 共鳴との対応において $2\pi f_1 = \sqrt{1/LC}$ と書くことができ、流体力学インダクタンスと流体力学キャパシタンスはそれぞれ

$$L \left(\frac{dI_s}{dt} \right) = -\frac{\Delta\mu}{m_4} \quad (3.21)$$

$$I_s = \frac{C}{m_4} \frac{d\Delta\mu}{dt} \quad (3.22)$$

で定義される [46, 22]。化学ポテンシャル差 $\Delta\mu$ は Gibbs-Duhem の関係

$$\Delta\mu = \frac{1}{\rho} \Delta P - s \Delta T \quad (3.23)$$

で表せる。ここで s は単位質量あたりのエントロピーである。今の場合温度差 ΔT はないので圧力差のみを考えればよい。電流に対応する超流動質量流は $I_s = \rho_s v_s a$ (a は流路の断面積) であり、超流動速度は $v_s = (\hbar/m_4)(\Delta\phi/l)$ (l は流路の長さ、 $\Delta\phi$ は流路の両端の位相差) であるから、式 (3.21) より流体力学インダクタンスは

$$L = -\frac{\Delta\mu}{m_4} \left(\frac{dI_s}{dt} \right)^{-1} = \frac{\hbar}{m_4} \left(\frac{dI_s}{d\Delta\phi} \right)^{-1} = \frac{l}{\rho_s a} \quad (3.24)$$

となる。ここで Josephson-Anderson の位相発展方程式

$$\frac{d\Delta\phi}{dt} = -\frac{\Delta\mu}{\hbar} \quad (3.25)$$

を用いた。この流体力学インダクタンスの式は直管流路の場合の式で、流路の実効的な断面積 a と長さ l の比 $\beta = a/l$ と超流動密度 ρ_s で書ける。圧力差 ΔP はダイヤフラ

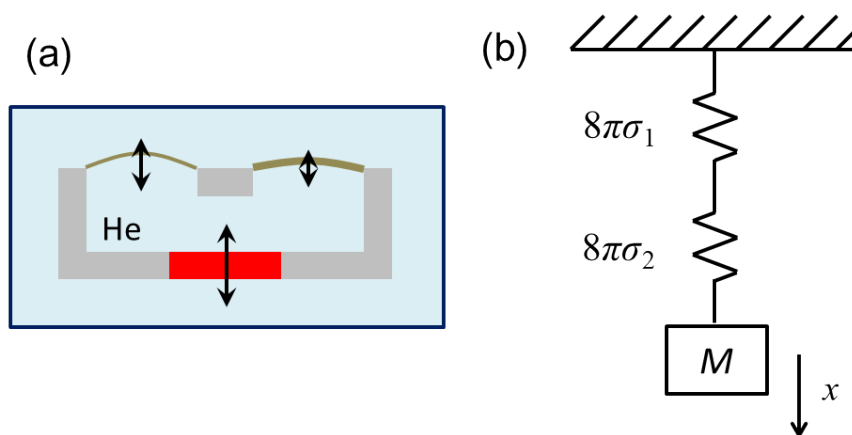


図 3.7. 最低次モードの (a) 概念図と (b) 質点系のモデル

ムの変位 x と合成ばね定数 k を用いて

$$kx = A_d \Delta P \quad (3.26)$$

と書いて、またダイアフラムの変位による液体ヘリウム 4 の体積変化は多孔体を通して流出入する質量流 I_s によると考えると、

$$\rho A_d \frac{dx}{dt} = I_s \quad (3.27)$$

である。これらから

$$\frac{d\Delta P}{dt} = \frac{k}{\rho A_d^2} I_s \quad (3.28)$$

となるので、式 (3.22) より流体力学キャパシタンス C は

$$C = \frac{\rho^2 A_d^2}{k} \quad (3.29)$$

となる。ここで合成ばね定数は $k = 8\pi(1/\sigma_1 + 1/\sigma_2)^{-1}$ であり、柔らかい検出ダイアフラムの寄与が支配的である。式 (3.24) と式 (3.29) から、結局最低次モードの共鳴周波数 f_1 は

$$f_1 = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{1}{LC}} = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{\rho_s}{\rho^2} \beta \frac{8\pi(1/\sigma_1 + 1/\sigma_2)^{-1}}{A_d}} \quad (3.30)$$

と書ける。 $f_1(T) \propto \sqrt{\rho_s(T)}$ であるから、この共鳴は T_c 以下の温度でのみ存在し、共鳴周波数 $f_1(T)$ の温度依存性は $\rho_s(T)$ で決まる。散逸は T_c 直下で流量が減少すると発散的に大きくなる。

このモードでは Gelsil 中の超流動質量流に対応してダイアフラムが上下同じ向きに振動する、すなわち逆位相モードである。これは駆動ダイアフラムが外力により押し下げられると内部体積のバルク液体ヘリウム 4 の圧力が上昇して Gelsil を通って流れ出し、その体積変化によって検出ダイアフラムが下方に変位するためである。連成振動の基本モード R_2 が同位相モードである一方で、 R_1 モードが逆位相モードであることは、図 3.5 に示す振幅が正負反対であることにも符合する。

3.5 実験方法

Helmholtz 共鳴のすべてのモードは駆動ダイアフラムに振動外力 $F(t)$ を加えたときの検出ダイアフラムの変位を検出することで調べる。2つのダイアフラムには直流バイアス電圧 $V_b = 350 \text{ V}$ を与えておき、駆動用の固定電極から交流電圧 V_{ac} を印加する。静電気力による外力は電圧の 2 乗となるので、交流電圧の振幅より十分大きいバ

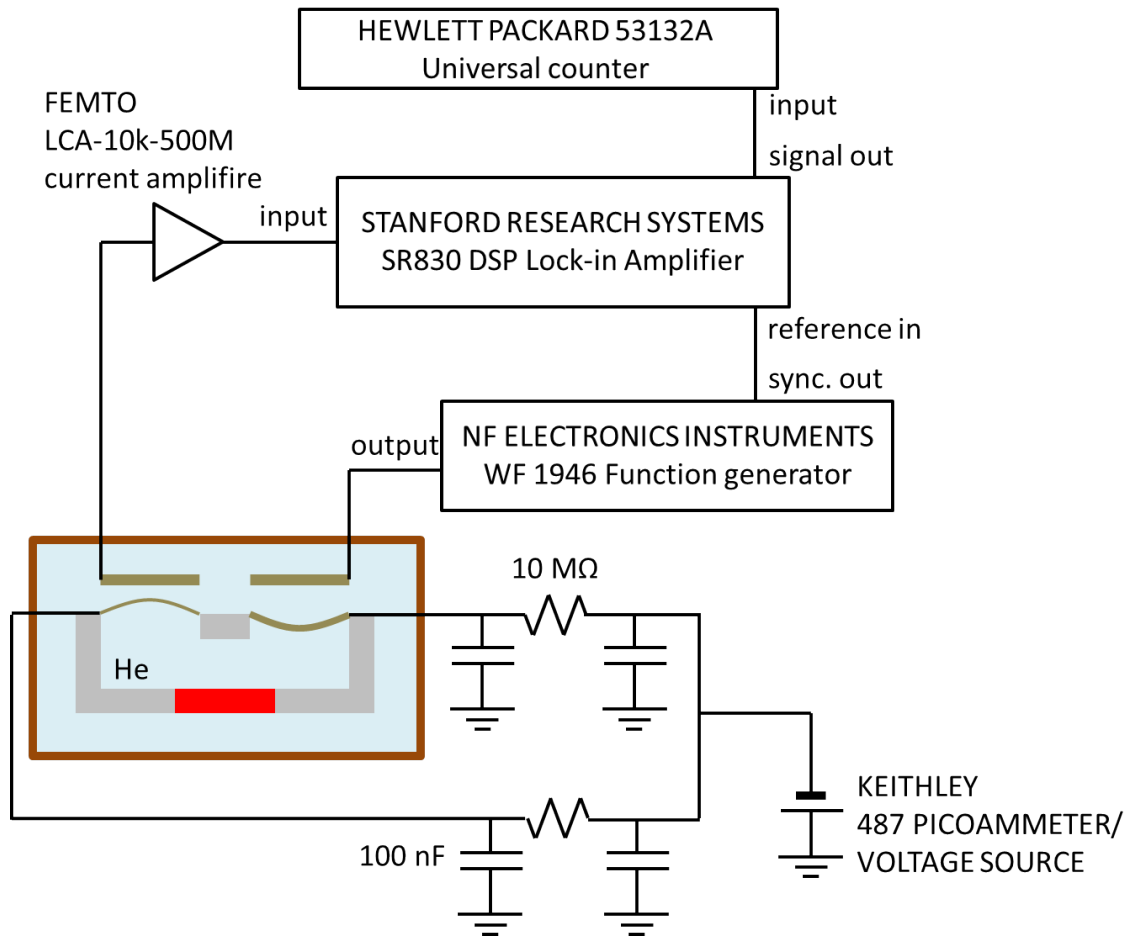


図 3.8. Helmholtz 共鳴実験の回路図。

イアス電圧を与えると $F(t) = (V_b + V_{ac0} \cos(\omega t))^2 \approx V_b^2 + 2V_b V_{ac0} \cos(\omega t)$ となり、入力電圧の周波数と振動の周波数が同じになり、また外力の振動成分を大きくすることができる。検出ダイアフラムにもバイアス電圧を与えておくことにより、検出用の固定電極にダイアフラムの変位に比例した変位電流が誘起される。これを電流プリアンプを介してロックインアンプで読み取ることで共鳴特性を得る。

測定回路を図 3.8 に示す。直流バイアス電圧とダイアフラムの間には抵抗を含むフィルタを設けており、電極の短絡などの問題が発生したときに大電流が流れないようにしている。またこれは電源ノイズを低減する役割も担う。ドライブ電圧はファンクションジェネレーターから発信される正弦波の周波数をプログラム上で変化させて、そのときの同じ周波数と位相を持つ矩形波をロックインアンプの参照信号として入力しながら測定することで、ドライブ電圧と同じ周波数の信号を読み取った。周波数はユニバーサルカウンターを用いて測定した。

共鳴特性は、共鳴点の周辺で周波数掃引を行うことで取得した。これを昇温過程で

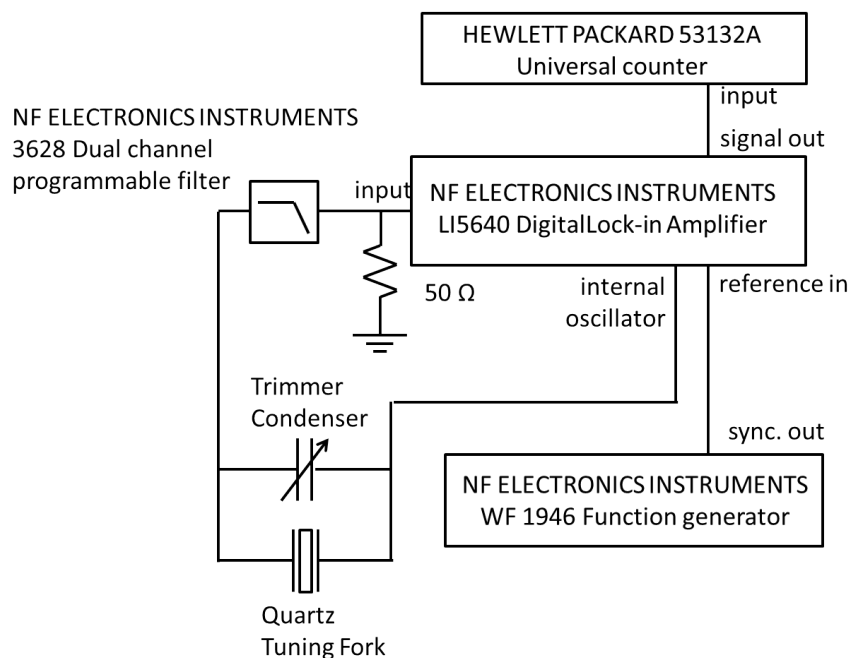


図 3.9. 音叉型水晶振動子の測定回路。

繰り返すことで、共鳴周波数、半値幅と共鳴点の振幅の温度依存性を調べた。これを圧力を変えて繰り返し行った。冷却には無冷媒ヘリウム3冷凍機を用いており、実験を行った温度域は0.7K～2.4Kで、圧力域はバルク固化圧以下の0.1～2.4MPaである。周波数特性には図3.5に示すように交流信号のXとYにそれぞれ温度変化しないバックグラウンドが存在する。これは共振器を含む測定回路系に起因する信号であり、バイアス電圧を $V_b = 0\text{ V}$ として測定するとHelmholtz共鳴は現れず、このバックグラウンドのみ測定できる。こうして得たバックグラウンドを多項式でフィッティングして引き去ることでHelmholtz共鳴の共鳴特性を得た。

各測定においては歪み圧力計の静電容量を常にキャパシタンスブリッジ (ANDEEN HAGERLING 社 2550A ultra precision 1kHz capacitance bridge) を使用して測定し、音叉型水晶振動子の共鳴周波数と共鳴点における振幅はロックインアンプを用いて共鳴点を追跡しながら測定を行った。音叉型水晶振動子の共鳴点の追跡にはロックインアンプの位相ロック機能を使用した。これはロックインアンプの内部発信器を用いて水晶振動子の振動を励起し、その出力を同じロックインアンプで読みとることで、交流振動の位相がゼロになるように発信周波数を調整する機能である。測定回路を図3.9に示す。音叉型水晶振動子自体や測定回路に浮遊容量が存在するため、周波数特性にバックグラウンドが存在する。これをトリマーコンデンサーを用いて差分を取ることで除去し、また回路由来の位相の遅れを調節して、共鳴特性を理想的な Lorentz 関数

に調整する。出力信号はローパスフィルターを介してロックインアンプに入力しており、また終端抵抗を接続している。位相ロックを行う際にはある程度共鳴点近傍の周波数を初期条件として与えなければならないため、外部のファンクションジェネレーターを用いて周波数を精度良く与えている。共鳴点の近傍に調節した後、ロックインアンプを参照モードからシグナルモード(位相ロックモード)に切り替え、時定数を短くすると、位相がゼロになるように共鳴点に周波数が引き寄せられる。この状態で周波数と共鳴点における振幅をモニターする。周波数は精度を向上するため、ロックインアンプのアナログ信号出力から周波数カウンターに信号を取り出して測定する。

温度測定は室温で $1\text{ k}\Omega$ の抵抗を持つ RuO_2 素子の抵抗値を PICOWATT 社 AVS-47A resistance bridge を用いて測定することで行った。 RuO_2 は無冷媒ヘリウム3冷凍機のヘリウム3ポットに備え付けられていたダイオード温度計の値を用いてあらかじめ温度校正しておき、音叉型水晶振動子の共鳴特性で補正を行った。温度調整は実験ステージに搭載したマンガニン線ヒーターと PICOWATT 社 TS-530A temperature controller を用いて PID 制御により行った。

第 4 章 実験結果

本章では Helmholtz 共鳴実験の結果を示し、定性的な振る舞いを議論する。本研究では最低温で液体ヘリウム 4 を各圧力に調整した状態で各温度において周波数掃引を行い、それぞれの共鳴曲線を直接得て Lorentz 関数フィッティングをかけることで、共鳴周波数、半値幅、共鳴点における振幅の情報を得た。共鳴周波数からは超流動密度 ρ_s 、半値幅からはエネルギー散逸、振幅からは Gelsil 中の超流動速度 v_s の情報が得られる。

本研究では 2 つの Gelsil 試料に対して R_2 モード (ダイアフラムと液体ヘリウム 4 の連成振動の基本モード) の温度依存性を詳細に調べた。Gelsil 中超流動の考察は R_2 モードをもとに行う。試料 B で得られた最低次モード R_1 は共鳴の機構が比較的明瞭なため、超流動密度の決定において比較のために参照する。

Gelsil 試料として、公称孔径が 2.5 nm の試料 A と 3.0 nm の試料 B を使用した。これらは直径は同じ 9 mm で厚みが異なり、試料 A では 1.0 mm、試料 B では 2.1 mm である。細孔径の分布は窒素吸脱着測定の結果、両方で同じ 3.0 nm である。これらの 2 つの試料に対して異なる圧力において Helmholtz 共鳴の共鳴周波数と散逸、及び振幅の温度依存性を測定した。最低次モード R_1 は低周波数域に位置しているため試料 A の測定の時点では電源ノイズの干渉のため正確な測定が困難であったが、回路系の改善によって試料 B ではその温度依存性を得ることが出来た。得られた実験結果を、2 つの試料で対比しながら議論する。

4.1 連成振動基本モード R_2 の共鳴周波数 f_2

試料 A と試料 B について、異なる圧力における共鳴周波数の振る舞いを図 4.1 に示す。それぞれの試料に対して、共にバルク超流動転移温度 T_λ と Gelsil 中超流動転移温度 T_c とみられる温度で特徴的に共鳴周波数が増加している。バルク超流動転移温度 T_λ は圧力に対して明確に分かっており、本実験で見られた高温側の共鳴周波数の立ち上がりとは一致している。Gelsil 中超流動転移温度は過去の捻じれ振り子実験において圧力依存性が調べられており、本実験で見られた低温側の共鳴周波数の立ち上がりはこの温度より少し高いが概ね一致していることから、これらの共鳴周波数の変化はそれぞれバルク液体ヘリウム 4 と Gelsil 中ヘリウム 4 の超流動転移に起因すると判断した。

前節のモデルでは T_c 以下の温度における連成振動基本モード R_2 の共鳴周波数 f_2 は

$$f_2 = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{8\pi(\sigma_1 + \sigma_2)}{\rho V - \alpha\rho_s}} \quad (4.1)$$

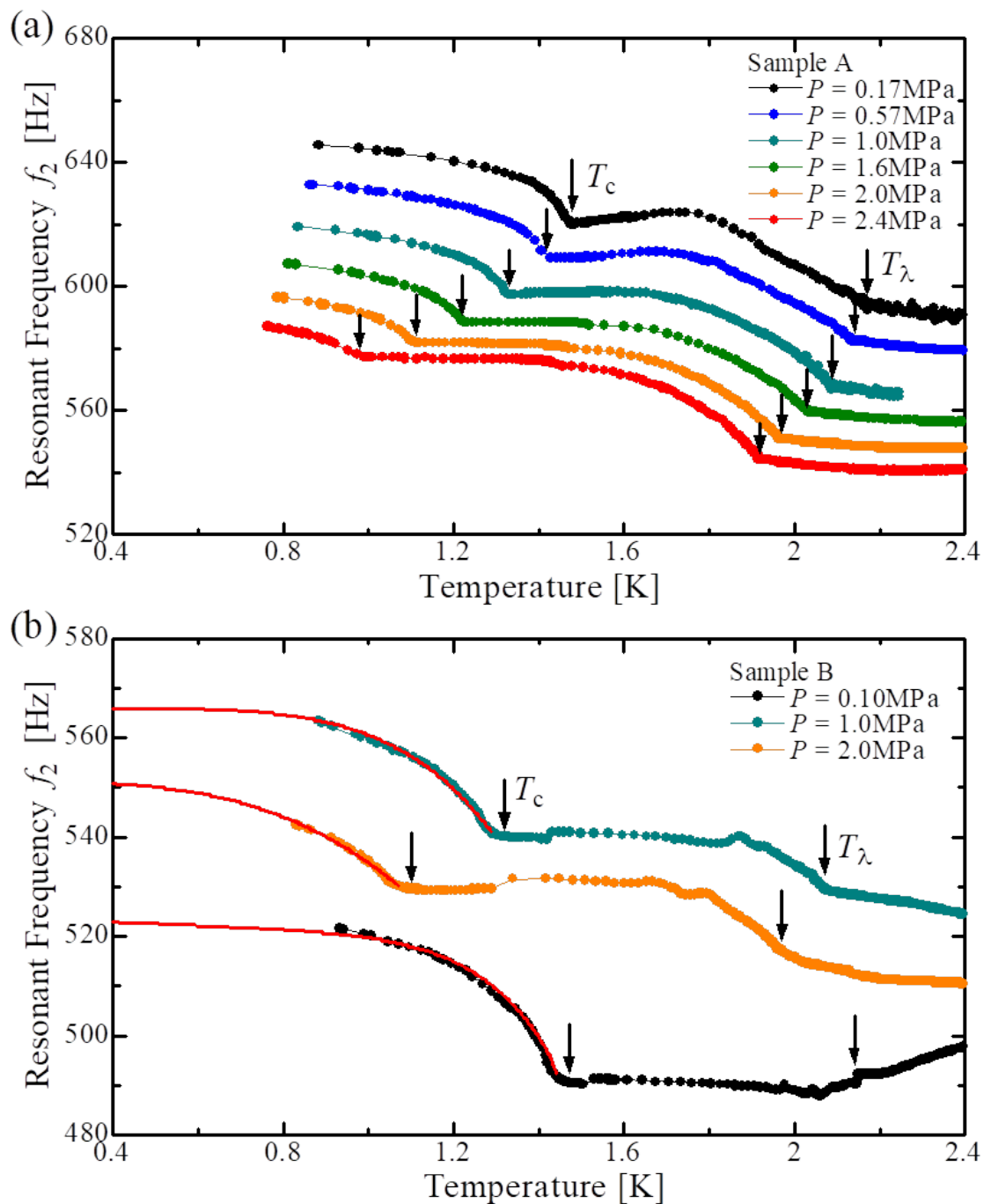


図 4.1. 異なる圧力における連成振動基本モード R_2 の共鳴周波数 f_2 の温度依存性。それぞれ (a) 試料 A と (b) 試料 B である。バルク超流動転移と Gelsil 中超流動転移の温度を矢印でそれぞれ T_λ 、 T_c として示している。(b) の曲線は式 (4.2) から求めた $\rho_s(T)$ を式 (4.1) に則って引いたものである (係数は合うように決めている)。

と書ける。共鳴周波数の振舞いは圧力上昇に対して平行して低周波数に下がる傾向が見えており、これは液体ヘリウム 4 の質量が圧力上昇に従って重くなるためである。但し試料 B に対しては、0.10 MPa のデータでは共鳴周波数は他の圧力のデータより低周波数に現れており、また T_{λ} 付近で共鳴周波数が高温に向かって上昇しているが、これは検出ダイアフラムの機械的な不安定性のためであると考えている。 T_{λ} の低温側の近傍では共鳴周波数は少し乱れる傾向があるが、これは実験装置内に励起された第二音波の定在波と R_2 モードにおけるダイアフラムの振動が結合しているためである。また試料 A においては 0.17~1.0 MPa の低圧において T_c と T_{λ} の間の中間温度域の共鳴周波数の振舞いが、他のデータと異なり単調でなく極大を持つような振舞いをしていいるが、この原因は明らかでない。 T_c の高温側の近傍では共鳴周波数が飛びを持つ場合があるが、これもダイアフラムの機械的な不安定性に起因し、周波数掃引の周波数域を変更したことで飛びが生じている。これらのような不安定性が存在するが、 T_c 以下の共鳴周波数の評価には本質的な影響は小さく、本研究では問題ではない。

T_{λ} における共鳴周波数の立ち上がりは実験装置内のバルク空間の液体ヘリウム 4 が超流動転移することによるもので、バルク液体から共振器が受ける粘性抗力が減少することで、共振系の実効的な負荷質量が減少することによる。一方で T_c での共鳴周波数の立ち上がりは Gelsil 中ヘリウムの超流動転移によって共振器の内外の液体ヘリウムが行き来できるようになり、連成振動に追従する液体ヘリウムの質量が減少することによる。従って式 (4.1) に示すように、共鳴周波数の変化は超流動密度の変化を表している。

試料 A では T_c での共鳴周波数の立ち上がりは極めて急峻であるが、一方で試料 B では共鳴周波数の立ち上がりは少し鈍った振舞いをしていいる。このことから試料 A では T_c は明確に決まるが、試料 B では T_c の値に少し不確かさが残る。 T_{λ} から低温の共鳴周波数の振舞いはバルク超流動ヘリウムの超流動密度に対応して上に凸な振舞いであることから、共鳴周波数の変化が緩やかに上昇に転じる温度を T_c と決めると、この T_c の値は試料 A における T_c と良く一致していた。多孔体中の超流動速度 v_s が臨界速度を超えると超流動流は減衰を受けることになるが、共鳴周波数の鈍った振舞いはドライブ電圧を 1/10(ドライブ外力を 1/10) に変化させても有意な違いが見られなかったことから、臨界速度の影響でないと言える。これらの特徴から、試料 B で見られた共鳴周波数の立ち上がりの鈍りは実際に Gelsil 中の超流動密度 ρ_s の成長が T_c 近傍で鈍っていると考えられるが、この二つの試料の間で ρ_s の振舞いが異なる理由は明らかでない。多孔体試料中の細孔分布の詳細な相違など、未知の要因が働いていると考えられるが、実験前に行っている窒素吸脱着測定では細孔分布に有意な差は見られていない。試料 B における T_c と共鳴周波数が明瞭に立ち上がり始める温度までの差は圧力に依らず 50 mK 程度であった。

4.2 最低次モード R_1

最低次モード R_1 の共鳴特性は図 4.2 に示すような温度依存性を持つ。共鳴周波数 f_1 は低周波数域で遷移し、特に超流動転移温度 T_c 近傍でゼロに漸近する。そのため試料 A の測定の時点では電源ノイズと結合したロックインアンプのバックグラウンドに埋もれて温度変化を十分に得られなかった。これに対し、試料 B の測定においては回路系を改善することで R_1 モードの温度依存性を各圧力で得ることができ、この共鳴周波数が超流動密度の温度依存性を明確に表していることが明らかになった。

図 4.3 に試料 B について、異なる圧力における R_1 モードの共鳴周波数 f_1 と散逸 Q^{-1} の温度依存性を示す。このモードは Gelsil 中の超流動流が振動することで生じる共鳴であるから、 T_c 以上の温度では質量流は生じず、共鳴が生じない。そのため共鳴周波数はゼロに近づき、散逸は質量流の減少に伴い T_c に向かって発散的に増大する。 T_c 以下の温度では超流動流の増大に伴い、共鳴周波数は低温にむかって成長し、散逸は減少していく。先述の議論より、 R_1 モードの共鳴周波数 f_1 は

$$f_1 = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{\rho_s}{\rho^2} \beta \frac{8\pi(1/\sigma_1 + 1/\sigma_2)^{-1}}{A_d^2}} \quad (4.2)$$

と書ける。ダイアフラムの張力 $\sigma_{1,2}$ や面積 A_d は温度変化せず、バルク液体ヘリウム 4 の密度 ρ も実験の温度域ではほぼ一定であるので、この共鳴周波数の温度依存性は

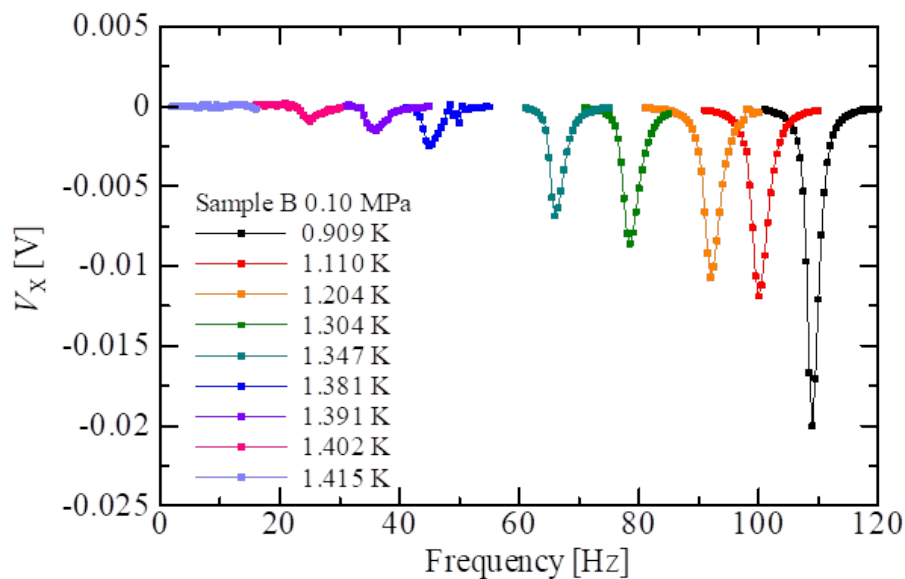


図 4.2. 試料 B について 0.1 MPa における最低次モード R_1 の共鳴曲線の温度依存性の例。

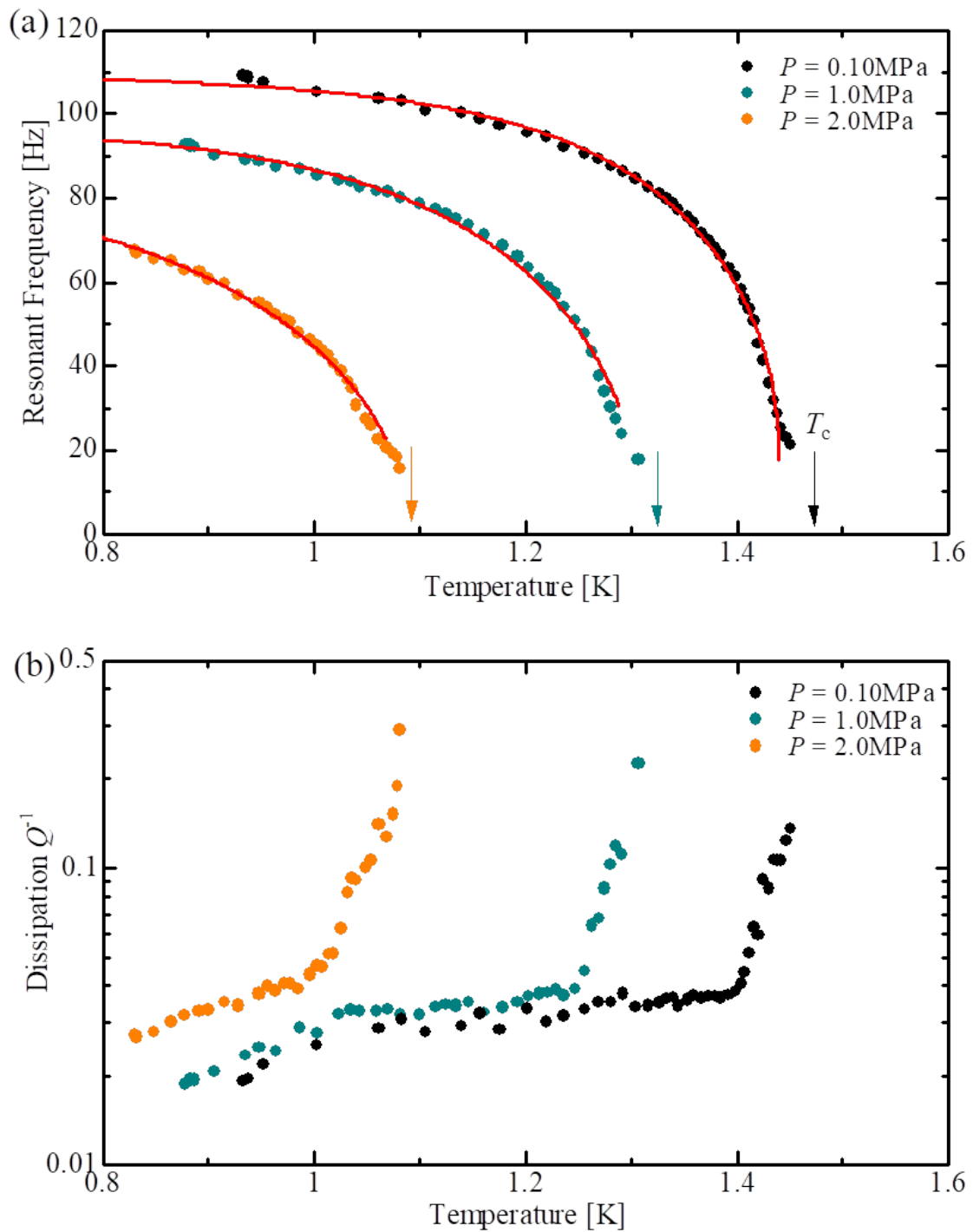


図 4.3. 試料 B について異なる圧力における R₁ モードの (a) 共鳴周波数 f_1 と (b) 散逸 Q^{-1} の温度依存性。バルク超流動転移と Gelsil 中超流動転移の温度を矢印でそれぞれ T_A 、 T_c として示している。

$f_1 \propto \sqrt{\rho_s}$ として Gelsil 中の超流動密度をそのまま反映している。

R_1 モードは T_c の近傍で共鳴周波数が小さくなり、また散逸が増大することで周波数特性は極めてブロードになり、共鳴周波数の同定が困難になる (図 4.2)。そのため T_c 近傍で正確に臨界挙動を調べるのが困難であるが、超流動密度の全体的な振る舞いを調べる上で有用である。図 4.3 に示した実線は各圧力の共鳴周波数から超流動密度 ρ_s の温度依存性を評価するために引いた任意関数である。この曲線の通り ρ_s の温度依存性を仮定して、式 (4.1) によって T_c 以下の共鳴周波数の変化を評価すると良く一致した (図 4.1)。このことから式 (4.1) と式 (4.2) を用いた ρ_s の評価は共に妥当であると言える。

R_1 モードの散逸の温度依存性は T_c から急激に減少しているが、その後一度平坦になった後、低温で再び減少する振る舞いが見られている。この起源は明らかではないが、通常 ρ_s の成長に伴って単調に減少すると期待されることから、ブロードなピークのような振舞いが重なっているように見える。しかしながらその全容の把握には更に低温まで測定を行う必要がある。

4.3 R_2 モードの散逸 Q^{-1}

試料 A と試料 B のそれぞれについて、異なる圧力における R_2 モードの散逸 Q^{-1} の振舞いを図 4.4 に示す。散逸はいずれのデータも T_λ で急激に減少を始める。これは共振器内のバルク空間の液体ヘリウム 4 が超流動転移したことで粘性散逸が減少するためであり、共鳴周波数の立ち上がりに対応している。 T_c と T_λ の間の中間温度域では散逸の温度依存性が乱れているが、これは共振器内の体積において第二音波の定在波が励起してダイアフラムの振動と結合するためであり、共鳴周波数に見られていた小さなピーク状の異常と対応している。

それぞれの試料の各圧力について、 T_c 以下の温度で散逸は更に減少する傾向が見られる。しかしこれは T_c で直ちに減少する訳でなく、 T_c から離れた十分低温で減少している。特に試料 B の各データでは T_c 以下で散逸がブロードなピークを持っているように見られる。

試料 A の最低圧 0.17 MPa のデータでは 1.4 K 付近で比較的大きなピークを持っており、ドライブ電圧を変えた場合でも再現しているものの、他のデータではこれほど顕著なピークは見られておらずピークの原因は明らかではない。また各圧力において T_c 直下に小さなピークが見られており、試料 A では全てのデータで圧力に依らず同様に存在している。このピークはドライブ電圧に依存する様子が見られており、過去に Vycor において Tyler らが観測した T_c 直下の特徴的なピーク [49] と同様のものと考えられる。彼らはその散逸ピークの原因が、超流動転移に伴って生成して細孔にピン

止めされた量子渦が転移点近傍で運動し易くなり、その量子渦の運動によって散逸が生じていると考えた。超流動転移温度直下では多孔体中超流動に特有な第四音波が急激に成長するため、多孔体の巨視的なサイズで特徴付けられる定在波が励起し、共鳴実験に影響を与える可能性が考えられるが、本研究の範疇では明らかでない。但しこの小さな鋭い散逸ピークはドライブ電圧に依存しており、定性的には Tyler らの実験結果と符合する。

散逸 Q^{-1} の起源を明らかにするため、ドライブ電圧 V_{ac} を変えて測定を行った。図 4.5 に試料 B で 0.1 MPa においてドライブ電圧を $V_{ac} = 10 V_{pp}$ 、 $1 V_{pp}$ と変えたときの散逸 Q^{-1} の温度依存性を示す。ドライブ電圧を 10 倍変えるとドライブ外力も 10 倍に変化する。温度依存性はそれぞれ異なる昇温サイクルで測定している。 T_c 以上の温度で良く一致している一方で T_c 以下の温度では異なる振舞いが見られた。 T_c 以上の温度ではバルク空間の液体ヘリウム 4 からの粘性散逸として説明できており、系に蓄えられるエネルギーと散逸するエネルギーが共に変位速度に比例することから、 Q^{-1} は外力に依存しないことと符合し、また実験データが異なる昇温サイクルの間で良く合っていることが分かる。このことから、 T_c 以下の振舞いは明確にドライブ電圧に依存していると言える。

T_c 以下の温度では散逸は $10 V_{pp}$ ではブロードなピークを持った後、全体として減少している様子が見られるが、 $1 V_{pp}$ では T_c の低温側近傍のある温度から急激に減少しており、その間に小さなピークを持っている振舞いが見られる。この急激な散逸の減少は Gelsil 中ヘリウム 4 の超流動転移に伴い共振器の内外の体積の間で質量の輸送が許され、共振器全体として散逸が減少することに起因する。この振舞いは予備実験として Vycor ガラスを用いて行った Helmholtz 共鳴実験においても見られており (補遺 D)、今回の 2 つの Gelsil 試料の全てのデータにおいてこの散逸の減少が生じていると考えられる。散逸の減少が始まる温度が T_c からわずかに低温にずれているのは超流動密度 ρ_s の成長が T_c 直下でなだらかになっていることに起因している。この散逸の減少に重なって現れている散逸のブロードなピークは Gelsil に特有の現象である。

T_c 直下での多孔体中の超流動流による散逸の急激な減少は Gelsil の各データにおいて存在するはずで、ブロードなピーク状の散逸異常はこの超流動流による散逸減少に重なって現れているはずである。すなわち Gelsil を用いた Helmholtz 共振器の散逸の全体の振舞いは T_λ 以下の減少が特徴的なバルク液体からの粘性散逸、 T_c 直下からの超流動質量流による散逸減少、 T_c 直下から数百 mK の間に見られるピーク状の散逸異常の 3 つの要素からなる。

超流動は無散逸な質量流で特徴付けられる現象であるので、超流動転移によって散逸は一般に減少する。Vycor を用いた予備実験ではこの振舞いが見られていたが、一方で Gelsil においては更に何らかの付加的な散逸が生じており、このことは Gelsil 中

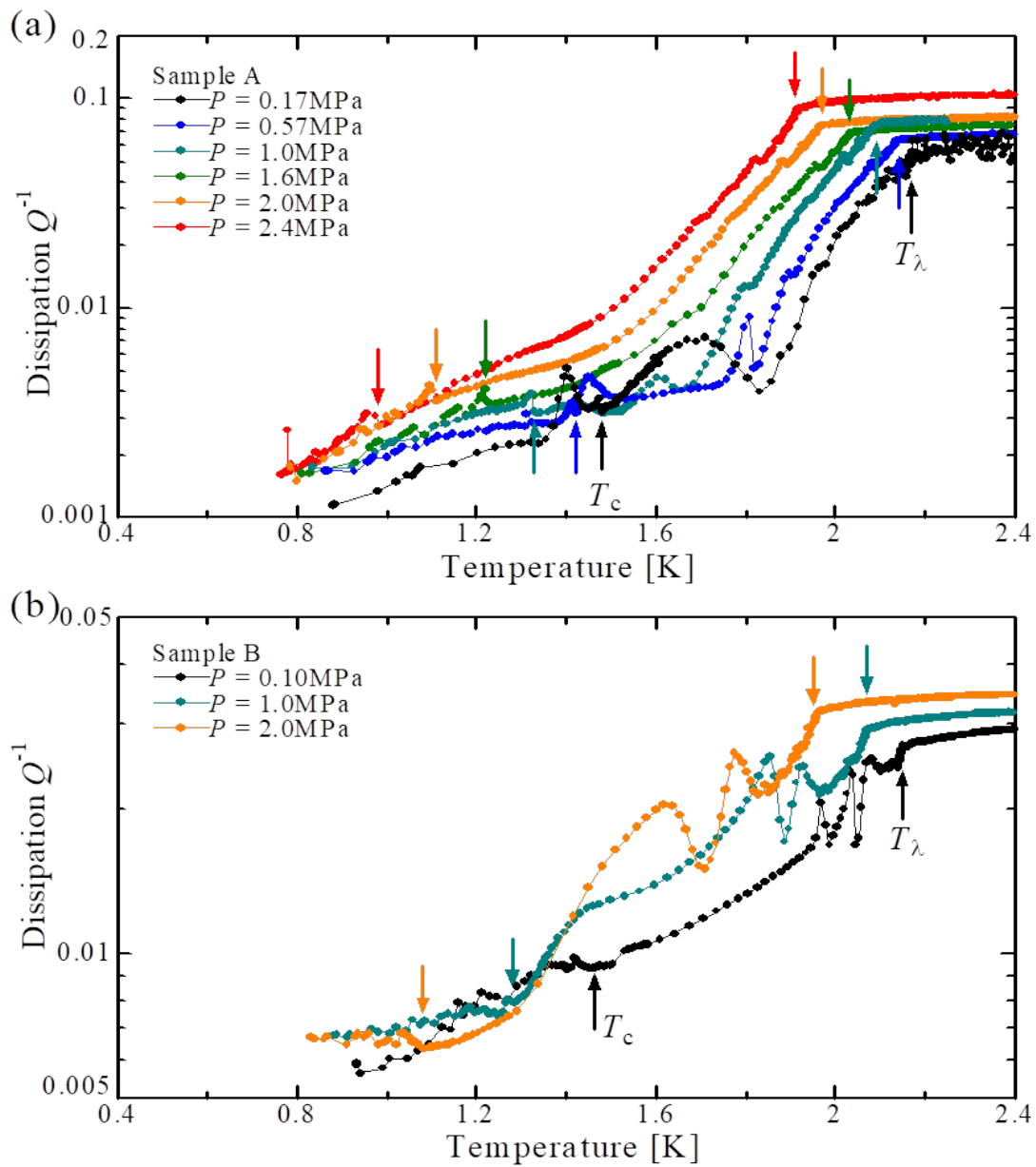


図 4.4. 異なる圧力における R_2 モードの散逸 Q^{-1} の温度依存性。(a) 試料 A と (b) 試料 B である。バルク超流動転移と Gelsil 中超流動転移の温度を矢印でそれぞれ T_λ 、 T_c と示している。

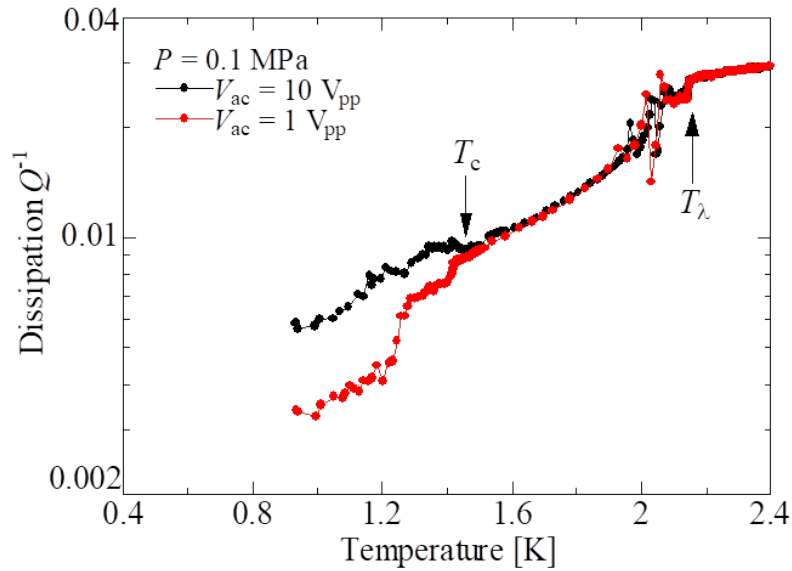


図 4.5. 試料 B について 0.1 MPa における散逸 Q^{-1} の温度依存性。バルク超流動転移と Gelsil 中超流動転移の温度を矢印でそれぞれ T_λ 、 T_c と示している。

ヘリウム 4 が巨視的な超流動性を獲得する時に散逸を伴うような機構が存在することを明確に示している。第 6 章ではこの散逸の起源と超流動転移の機構を明らかにするために散逸を上記の 3 つに分け、超流動転移による散逸を他の散逸から抜き出して議論する。この操作にあたって、試料 B のバルク超流動温度域 $T_c < T < T_\lambda$ の散逸は音叉型水晶振動子の共鳴と比較することで良く評価出来たが、試料 A の散逸はバルク液体の散逸の評価ができなかった。この原因は明らかでないが、ダイアフラムの機械的な不安定性が影響している可能性が考えられる。そのため超流動転移に伴う散逸の評価は試料 B に対して行う。

4.4 R_2 モードの振幅と超流動速度

共鳴における振幅の温度依存性は本研究で用いた Helmholtz 共振器の特性を良く表している。図 4.6 に振幅の温度依存性を Q 値と比較して、試料 B の 1.0 MPa の例を示す。通常の共振系では共鳴点での振幅 A は Q 値に対応しており、共鳴周波数 f_0 を用いて $A f_0 \propto Q$ の関係にある。図 4.6 には左軸に振幅 A を、右軸に Q 値と共鳴周波数 f_2 の比 Q/f_2 を示している。本研究で用いた Helmholtz 共振器においても T_c 以上の温度では振幅 A と Q/f_2 の温度依存性は良く一致している。一方で T_c 以下の温度では振幅の振舞いは大きく異なっている。これは T_c 以下の温度で Gelsil 中ヘリウム 4 が超

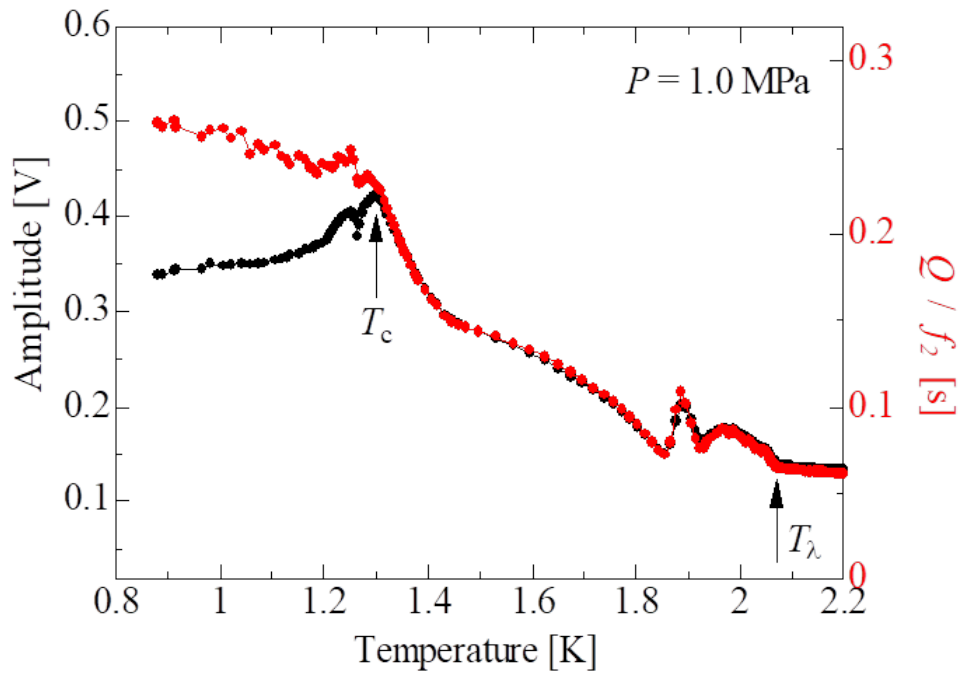


図 4.6. 試料 B の 1.0 MPa における振幅の温度依存性 (黒)。右軸には Q 値と共鳴周波数の比 Q/f_2 (赤) を示す。Gelsil 中超流動転移温度を矢印で T_c として示している。

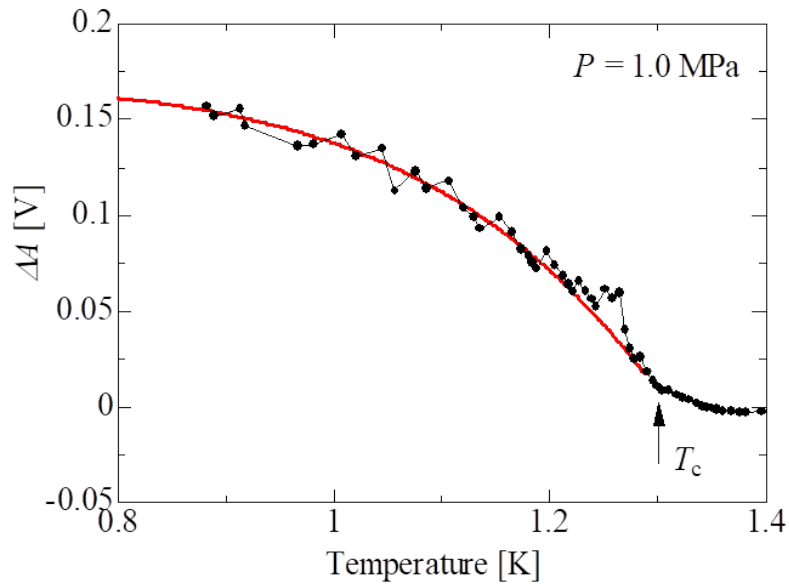


図 4.7. 試料 B の 1.0 MPa における T_c 以下での振幅の減少量 ΔA 温度依存性 (黒)。実線は ρ_s の温度依存性を定数倍して重ねたものである。Gelsil 中超流動転移温度を矢印で T_c として示している。

流動転移し、共振器の連成振動から一部の液体ヘリウム 4 が内外の体積の間で流れて共鳴振動から逃れているためと考えられ、これまでの共鳴周波数や散逸の挙動と符合する振舞いである。

超流動流による振幅の変化量 ΔA は $\Delta A = cQ/f_2 + d - A$ として求められる。ここで c と d は振幅 A と Q/f_2 を高温で合わせるように決める定数である。すなわち $cQ/f_2 + d$ は超流動流が存在しないと仮定した場合の振幅を表し、そこからの実際の振幅の差が超流動流によって運び出される体積に対応すると考える。 d は温度依存性を合わせるために導入した小さい定数で、共鳴曲線の Lorentz 関数フィッティングの誤差や小さな非線形性等を反映していると考えられる。このようにして求めた ΔA の温度依存性を図 4.7 に示す。赤い実線は最低次モードの共鳴周波数 f_1 から見積もった超流動密度 ρ_s の温度依存性を定数倍して重ねたものである。この係数から Gelsil 中の超流動速度を見積もることができる。

共振器の振幅 A は、バイアス電圧 V_b を印加した検出ダイアフラムの変位 x によって生じた変位電流を電流プリアンプを介してロックインアンプで電圧として検出したものであるので、検出ダイアフラムの変位 x は

$$x = \frac{\epsilon A_d}{V_b C^2} \frac{V}{2\pi G f_2} \quad (4.3)$$

と書ける。ここで ϵ は誘電率、 A_d はダイアフラムの面積、 C は検出ダイアフラムとそれに対向する固定電極の間の静電容量、 G は電流プリアンプのゲインであり、 V は振幅として検出した電圧である。超流動流による振幅の変化量 ΔA に対して式 (4.3) を用いると、ダイアフラムの変位は微小であると考え、Gelsil 中の超流動流によって運び出される体積は $A_d \Delta x$ (Δx は ΔA に対応する変位) と書ける。従って超流動質量流 J_s は

$$\rho A_d \frac{d\Delta x}{dt} = J_s = \rho_s v_s S \quad (4.4)$$

となる。ここで S は Gelsil のナノ細孔の全断面積であり、Gelsil 試料の寸法と空孔率から見積もることができる。この式から振幅の変化 ΔA は $\rho_s v_s$ に比例する。

図 4.7 に示す ΔA は超流動密度 ρ_s の温度依存性 (図中の実線) に良く一致している。このことから v_s は一定であると考えられる。交流では超流動速度は臨界速度を超えない限り、Josephson-Anderson の位相発展方程式に従って化学ポテンシャルで決まる速度に加速される。図 4.7 は実際に超流動速度が温度変化せず一定であることを示している。また以上の議論は最低次モードの共鳴周波数 f_1 や Helmholtz 共鳴周波数 f_2 で実験的に得た超流動密度 ρ_s が妥当である更なる証拠の 1 つであると言える。

図 4.7 の解析は他の圧力データでも可能で、それらから見積もられた Gelsil 中超流動速度は 0.1 MPa では 1.2 mm/s、1.0 MPa では 2.2 mm/s、2.0 MPa では 2.3 mm/s と得られた。高圧の 1.0 MPa と 2.0 MPa では超流動速度は概ね一致しており、最低圧

0.1 MPa では半分程度に小さく見積もられた。この違いの原因は明らかでないが、0.1 MPa では共鳴周波数の振舞いも他の圧力におけるデータと異なる振舞いをしていることから、ダイアフラムの不安定性と何らかの関係があると考えられる。0.1 MPa において実際の超流動速度がこれほど大きく異なっているとは考え難く、見積もりの上で何らかの物理量 (例えば静電容量 C 等) が不安定性の影響を受けて見積もりの値が小さくなっているものと考えている。

散逸や振幅の挙動については試料 B のデータをもとに議論してきたが、試料 A ではこれまでの振舞いがあまり見られない。これは実験上の問題のためで、試料 A の測定を行った実験装置ではドライブ電圧が十分には掛かっておらず、実際に共鳴の振幅は小さくなっていた。そのためダイアフラムの変位が小さく、機械的な不安定性の影響を大きく受けていると考えられる。超流動転移に伴う散逸の異常は試料 A においては不明瞭で、バルク液体ヘリウム 4 の散逸を正確に評価することが困難である事からも、試料 A に対しては正確な議論が出来ていない。これらの理由により、超流動転移に伴う散逸異常の議論は試料 B の結果を用いて行う。

上述のように検出ダイアフラムの変位 x は共振器の振幅 A として検出される一方で、駆動ダイアフラムの変位は測定に直接かからないため明らかではないが、以下のように考えられる。まず最低次モード R_1 では共鳴する要素は多孔体中の超流動流そのものであるため、質量流がそのままダイアフラムの変位に対応する。バルク空間の液体ヘリウム 4 の圧縮率は十分小さいため、超流動流が運ぶ質量は 2 つのダイアフラムに分配されるが、検出ダイアフラムは駆動ダイアフラムに比べて薄く、張力が小さいため、質量流の寄与は検出ダイアフラムに集中する。従って駆動ダイアフラムはほとんど変位しない。一方で連成振動モードでは、まず T_c 以上の温度では Gelsil 中に質量流がほとんど存在しないため、検出ダイアフラムの変位は駆動ダイアフラムの変位に対応する。特に基本モード R_2 ではバルク空間の液体ヘリウム 4 の圧縮率は効かないため、駆動ダイアフラムと検出ダイアフラムの変位は一致すると考えられる。 T_c 以下では Gelsil 中の超流動流によって検出ダイアフラムの変位は減少するが、この寄与はやはりダイアフラムの張力の比で決まり、検出ダイアフラムに集中する。従って駆動ダイアフラムの変位の温度依存性は T_c 以上の温度における変位の延長として近似的に扱える、すなわちバルク液体ヘリウム 4 の粘性散逸から見積もることができると考えられる。

4.5 共振器の圧力とバルク液体ヘリウム 4 の粘性散逸

実験装置には容量型歪み圧力計と音叉型水晶振動子を搭載している。本節ではそれらの挙動をもとに、実験装置内のバルク液体ヘリウム 4 の状態について述べる。

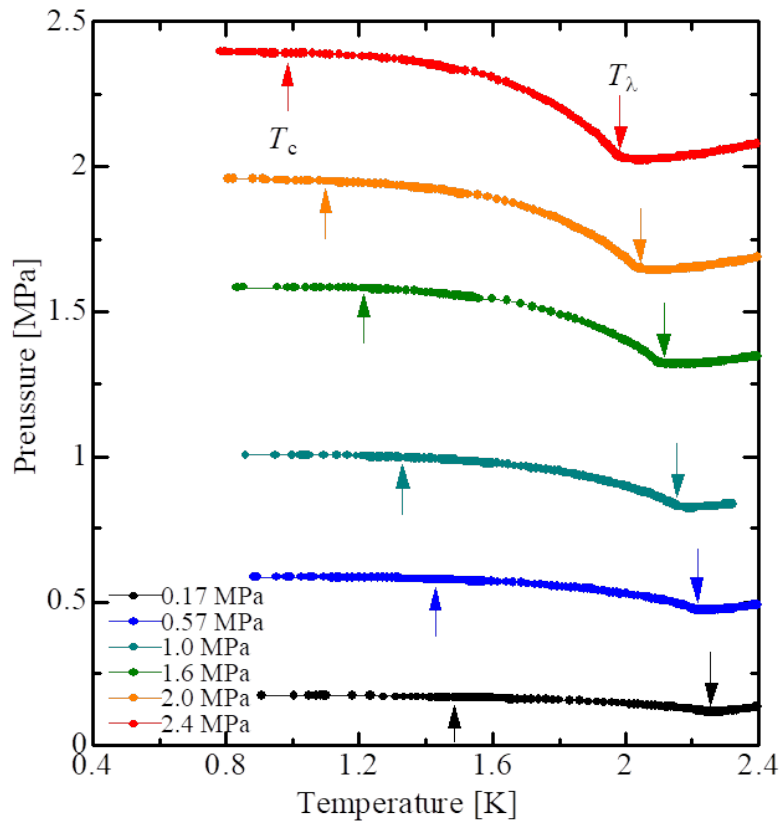


図 4.8. 試料 A での実験における各測定中の圧力の温度変化。バルク超流動転移と Gelsil 中超流動転移の温度をそれぞれ T_λ と T_c で示している。

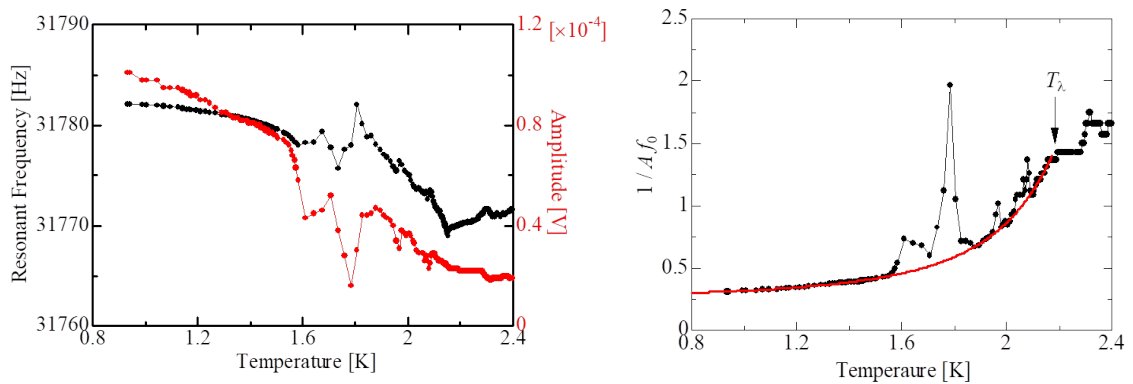


図 4.9. 試料 B の 0.1 MPa における水晶振動子の共鳴周波数 (黒) と振幅 (赤) の温度依存性 (左図) と、 $1/Af_0$ の温度依存性 (右図)。実線は $\sqrt{\rho\eta}$ を評価するための任意関数。

実験装置内の圧力変化はバルク液体ヘリウム 4 の密度変化となり、共鳴周波数に影響するため圧力には注意を払う必要がある。図 4.8 には試料 A を用いた測定の際の各データにおける圧力の温度変化を示している。圧力は T_λ で極小を持って低温に向かって増大する傾向が見られており、これは一定の圧力下で液体ヘリウム 4 の密度が T_λ において極大を持つことに対応している。実験装置は冷凍機内でほぼ孤立系になっているため、密度は一定に保たれており、液体ヘリウム 4 の密度変化を補填するように圧力が変化している。図 4.8 には T_c も示しているが、 T_c 付近では圧力はほとんど変化しておらず、共鳴周波数に及ぼす影響は十分小さくなっている。

一方で圧力変化は $T_c < T < T_\lambda$ の中間温度域では比較的大きい。バルク液体ヘリウム 4 による共振器の散逸は液体ヘリウム 4 の密度 ρ と常流動体の粘性係数 η できまる。これらの値は共に特徴的な温度依存性を持つが、圧力にも依存するため、今回のように圧力が温度変化する状況では、先行研究で得られている値を参照するのでは正しくない。そのため本研究では水晶振動子の共鳴の様子からバルク液体ヘリウム 4 の状態を調べ、直接比較する。

図 4.9 にそれぞれ共鳴周波数 f_0 と振幅 A 、また $1/Af_0$ の温度依存性の一例 (試料 B、0.1 MPa 測定時のデータ) を示している。共鳴周波数と振幅は T_λ から低温に向かって増加する振る舞いがみられており、これらをもとに計算した粘性散逸を表す量 $1/Af_0 \propto \sqrt{\rho\eta}$ は T_λ から低温に向かって減少している。それぞれのデータはいずれも $1.8 \text{ K} < T < T_\lambda$ の温度域で小さな乱れを持ち、より低温の $1.6 \text{ K} < T < 1.8 \text{ K}$ 付近では大きな乱れを伴っている。これらの起源は明確ではないが、実験装置内の詳細な構造が境界条件として振動子周りの流体力学を介して第一音波 (通常の音波) として結合しているためと考えられる。このような振舞いは理想的ではなく $1/Af_0$ にも反映されているものの、図中の実線のように任意関数で基本的な振る舞いを表現することができた。この $\sqrt{\rho\eta}$ の温度依存性を示す曲線は、Helmholtz 共鳴の散逸の解析において直接比較することができ、バルク液体ヘリウム 4 の散逸の評価において中心的な役割を果たした。

4.6 試料 A と試料 B の解析について

第 5 章では R_2 モードの共鳴周波数 f_2 をもとに Gelsil 中ヘリウム 4 の超流動密度の温度依存性を調べ、その超流動臨界指数から Gelsil 中ヘリウム 4 の超流動転移の量子臨界性と超流動転移の機構を議論する。第 6 章では R_2 モードのエネルギー散逸から超流動転移に伴う散逸異常を抜き出して評価し、Gelsil 中ヘリウム 4 の超流動転移の機構に基づいて定量的な考察を行う。

Helmholtz 共振器にはダイアフラムの機械的な不安定性やバルク液体ヘリウム 4 と

結び付いた異常が見られるが、Gelsil 中超流動転移温度 T_c 以下の共鳴周波数の変化は安定しており、試料 A、試料 B の両方で解析が可能であるため、全てのデータに対して臨界指数の評価を行う。またその解析の妥当性は第 5 章でスケーリングを通して確認する。

一方で散逸の議論では、まず全体の散逸の温度依存性からバルク液体ヘリウム 4 の散逸の寄与を引き去って T_c 以下の散逸を抜き出す必要があるが、試料 A のバルク液体の散逸は上述の通り機械的な不安定性の影響を受けており、試料 B や音叉型水晶振動子のものとは異なっているため差し引きが出来なかった。一方で試料 B においては散逸の温度依存性は良く説明出来ている。そのため散逸の議論は試料 B に対してのみ行う。

第5章 臨界指数の評価と4次元XY臨界性

本章ではナノ多孔体 Gelsil ガラス中ヘリウム4の超流動転移に伴う臨界挙動を調べるための超流動密度の評価について述べ、超流動転移温度 T_c 近傍で定義される臨界指数を議論する。また得られた臨界指数が量子相転移の性質を示す4次元XYモデルに属することから、考えられる超流動転移の機構と有限温度における量子臨界性の存在について議論する。本章の考察は2つのGelsil試料AとBの全ての圧力におけるデータに対して行い、臨界指数が各データ間で符合していることを示す。

5.1 超流動臨界指数の決定

先述の通り、超流動転移温度 T_c 以下の温度において R_2 モード (連成振動の基本モード) の共鳴周波数 f_2 は

$$f_2 = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{8\pi(\sigma_1 + \sigma_2)}{\rho V - \alpha \rho_s}} \quad (5.1)$$

と書ける。これより、Gelsil 中ヘリウム4の超流動密度 ρ_s は

$$\frac{1}{f_2^2(T_c, 0)} - \frac{1}{f_2^2(T, \rho_s)} = \frac{\pi\alpha}{2(\sigma_1 + \sigma_2)} \rho_s \quad (5.2)$$

により決定できる。 α は構造に起因する定数、 $\sigma_{1,2}$ はダイアフラムの張力であり温度変化しないため、式(5.2)の左辺を実験結果から見積もれば、値の大きさは異なるが超流動密度 ρ_s の温度依存性が得られる。但しこれは T_c 以下の共鳴周波数の温度変化がすべて ρ_s に起因するとした場合の表式であり、実際には T_c 直上の共鳴周波数の温度変化が T_c 以下でもバックグラウンドとして影響することが考えられるため、このバックグラウンドを温度の1次式で仮定して式(5.2)から引き去っている。この処理は T_c から低温に離れると妥当性を失う可能性があるが、臨界指数の議論は T_c 近傍で行うため問題とならない。またバックグラウンドを引き去る処理は恣意的になる可能性があるが、実際にはこの処理によって臨界指数が大きく変動することはなく、議論の本質に影響を与えない。

超流動密度の臨界挙動は、超流動転移温度 T_c の近傍において

$$\rho_s(T) = |1 - T/T_c|^\zeta \quad (5.3)$$

なる冪乗則で記述される。このときの指数 ζ が超流動密度の温度に対する臨界指数である。超流動密度 ρ_s に対応する $1/f_2^2(T_c) - 1/f_2^2(T)$ (バックグラウンドを差し引いたもの) の温度依存性を図5.1に示す。横軸は換算温度 $t = 1 - T/T_c$ としており、両対数軸で表示している。臨界挙動は式(5.3)のように冪乗則で書かれるので、両対数プロットを描けば傾きが臨界指数になる。

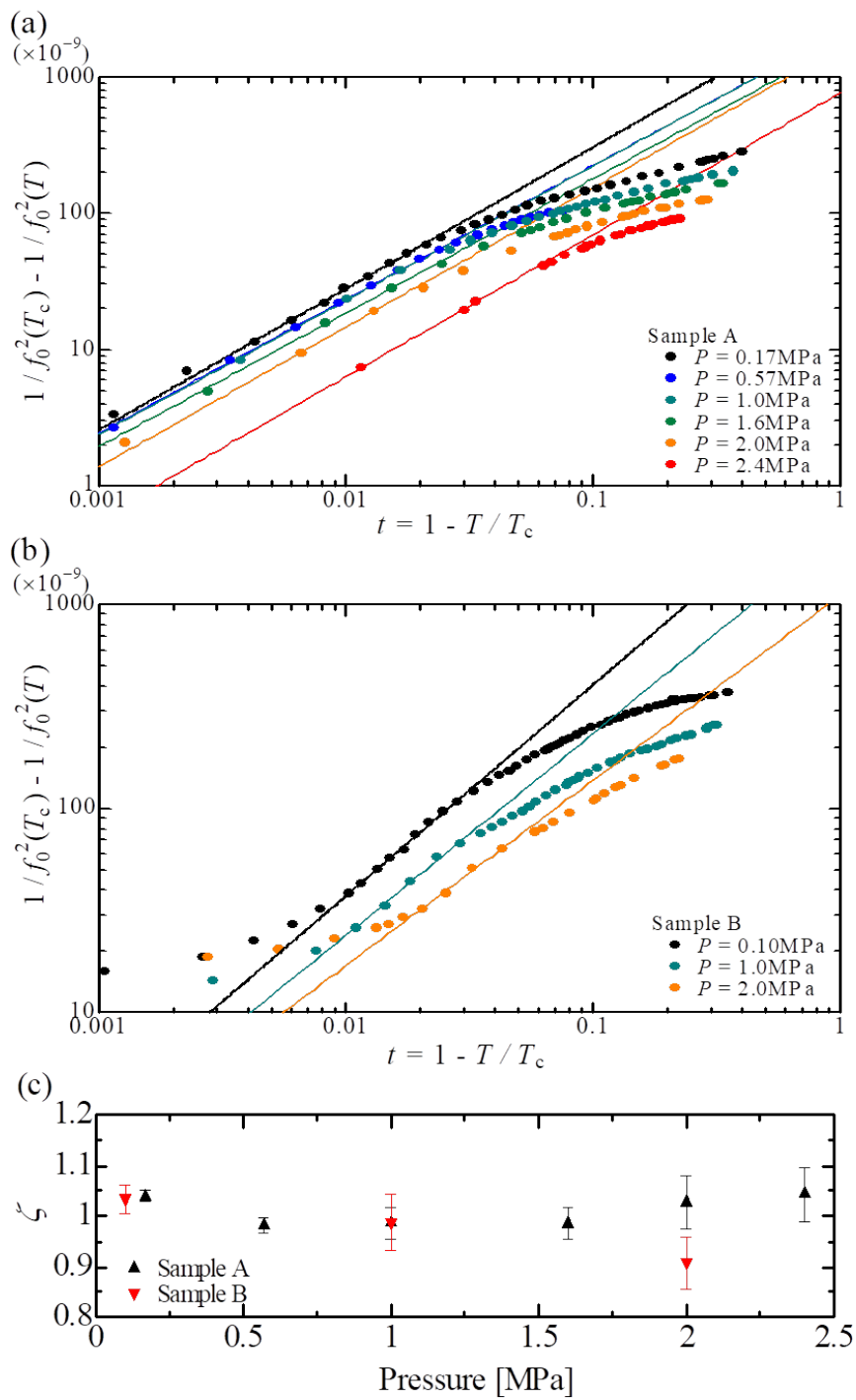


図 5.1. (a) 試料 A と (b) 試料 B における Gelsil 中ヘリウム 4 の超流動密度の換算温度 $t = 1/T/T_c$ 依存性。(c) 異なる試料、圧力における超流動臨界指数 ζ

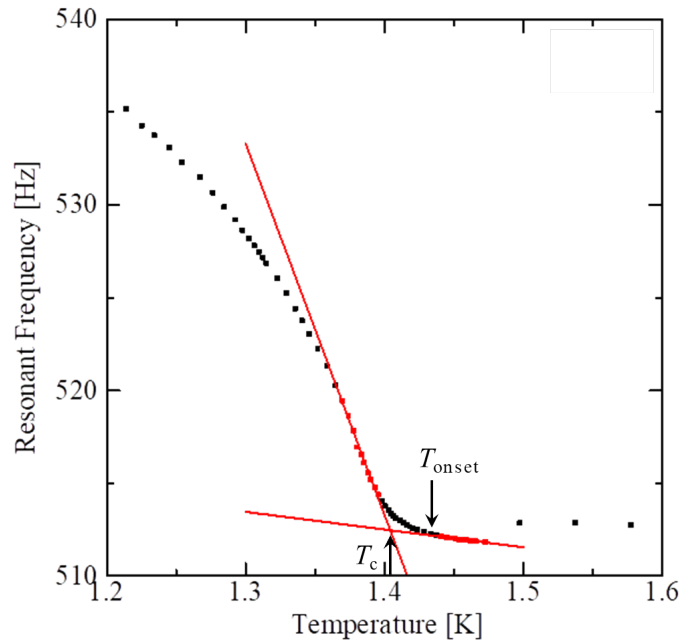


図 5.2. 試料 B、0.1 MPa の超流動転移温度近傍における共鳴周波数の温度依存性。 T_c は臨界現象を記述する際の臨界温度としての超流動転移温度、 T_{onset} は緩やかに共鳴周波数が上昇し始める温度を示している。赤いプロットは赤い直線を外挿する際にフィッティングに用いた点を表している。

試料 A で得られた結果 (図 5.1(a)) は、いずれの圧力に対してもプロットは超流動転移温度 T_c の近傍、 $t < 0.03$ の温度範囲で直線的に並んでおり、 T_c から離れた低温、 $t > 0.03$ では直線から逸脱する様子が見られる。一方で試料 B で得られた結果 (図 5.1(b)) はいずれの圧力でも T_c の直近、 $t < 0.007$ で振舞いが異なっている。これは共鳴周波数 f_2 の振舞いに見られるように、超流動密度 ρ_s の T_c 近傍での振舞いが鈍っていたことを反映している。しかしながら $0.007 < t < 0.03$ の温度範囲ではやはり直線的な振る舞いが見られ、臨界指数 ζ を評価することができた。

図 5.2 に示すように、試料 B では全圧力において超流動転移点での共鳴周波数の立ち上がりが同程度の温度幅をもって鈍った振る舞いをしている。この鈍りの影響を取り除いて精度良く臨界現象を調べるために、臨界温度としての超流動転移温度 T_c は緩やかに巨視的な超流動性が成長し始める温度 (図 5.2 では T_{onset}) とは別に定義し直している。各圧力のデータに対して T_c の再決定には恣意性がないよう、図 5.2 に示すように、 T_{onset} の高温側と低温側で強く立ち上がっている部分の共鳴周波数の温度依存性から直線を外挿し、それらの交点を T_c とするよう一意に決定した。仮に T_{onset} を臨界温度と見做して臨界挙動を調べようとする、両対数プロットの原点がずれることになるため、臨界指数を正確に評価することができなくなる。

表 2. 様々な系における超流動ヘリウム 4 の臨界指数 ζ の値。

系	細孔径	空孔率	P (MPa)	T_c (K)	ζ	出展と実験方法
バルク ^4He	-	-	SVP	2.172	0.6705 ± 0.0006	Goldner <i>et. al.</i> , 第二音波 [54]
バルク ^4He	-	-	SVP-2.91	2.172-1.782	0.66-0.68	Greywall <i>et. al.</i> , 第二音波 [23]
3D XY	-	-	-	-	0.67155 ± 0.00027	Campostrini <i>et. al.</i> [55]
Vycor	7 nm	30 %	SVP	1.955 K	0.65 ± 0.03	Kiewiet <i>et. al.</i> , 第四音波 [27]
ポーラス金	24, 75 nm	58, 69 %	SVP	2.169 K	0.67 ± 0.01	Yoon and Chan, 捻れ振動子 [32]
Xerogel	10 nm	60 %	SVP	2.088 K	0.89 ± 0.02	Chan <i>et. al.</i> , 捻れ振動子 [28]
Aerogel	-	99.5-94 %	SVP	2.1717-2.1698 K	$(0.72-0.81) \pm 0.01$	Yoon <i>et. al.</i> , 捻れ振動子 [33]
Aerogel	-	94 %	SVP	2.166 K	0.81 ± 0.01	Wong <i>et. al.</i> , 捻れ振動子 [35]
Aerogel	-	93.6 %	SVP-2.9	3 mK below T_λ	0.755 ± 0.003	Mulders <i>et. al.</i> , 熱パルス [56]
Gelsil	3 nm	50 %	0.1-2.4	1.47-1.0 K	1.0 ± 0.1	本研究

上述の通り決定した臨界指数 ζ を各試料の各圧力のデータに対して並べたものが図 5.1(c) である。図中のエラーバーは両対数プロットのフィッティングに対する標準偏差を示しており、その他の誤差要因は含まない。図に示す通り、臨界指数 ζ は 1.0 ± 0.1 という値を取り、有意な圧力依存性は見られない。ほとんどのデータに対する臨界指数 ζ は 1、もしくはわずかに大きな値を取っており、唯一試料 B の 2.0 MPa における ζ のみ小さい 0.91 という小さい値を取っている。図 5.1(b) に見られるように、試料 B の 2.0 MPa のデータは特に両対数フィッティングが可能な点数が少なく、 ζ の値が小さくなっている原因が本質的なものか実験的なエラーかは明らかではない。しかしこの値を考慮しても、得られた臨界指数 ζ は全て 3 次元 XY の臨界指数として期待される $\zeta = 2/3$ より高い値を示している。 $\zeta = 2/3$ という値はバルク液体ヘリウム 4 や Vycor 中ヘリウム 4 の超流動転移において実験的に得られているが、一方で第 1 章で述べた通り、Xerogel や Aerogel 中ヘリウム 4 では超流動臨界指数 ζ はこの値より高い値が得られている (表 2)。しかしながら本研究で得られた $\zeta = 1.0 \pm 0.1$ という値は依然として過去の研究で得られたどの臨界指数よりも明らかに高い値を取っている。

臨界現象は相転移点における性質を議論しているため、本来は相転移点近傍ほど物性値が重要になる。この点では試料 B の臨界指数の評価において T_c 近傍のデータを除いて臨界指数を議論するのは、一般には妥当でないことになる。仮に臨界点近傍の振舞いを含めて両対数プロットが直線的になるように T_c を決めて臨界指数を評価すると、2 以上の値を得た。これは試料 A とは全く異なる結果であり、試料の違いによって臨界指数が本質的にこれほど変化するとは考え難く、また $\zeta = 2$ という臨界指数は (現時点で) 説明がつかない。そのため T_c 近傍の ρ_s の鈍りは除外して臨界指数を決定している。過去に Vycor を用いた先行研究においても、 T_c 近傍で ρ_s が両対数プロットにおいて直線から逸脱する振舞いが観測されている [28]。このことから T_c 近傍での ρ_s の鈍りは多孔体の特性であり、本質的なヘリウム 4 の超流動臨界現象に起因する振舞いではない考えられる。

実験的に決定した臨界指数の妥当性については超流動密度 ρ_s の評価が重要になる。

まず式 (5.2) による ρ_s の評価であるが、これは最低次モード R_1 から得られる ρ_s の温度依存性とよく一致することを確認している。また超流動転移温度 T_c 以下の温度における共振器の振幅の振舞いから見積もられた Gelsil 中の超流動質量流の評価からも、超流動速度 v_s が温度に対して一定と考えられるため質量流の温度依存性は ρ_s の温度依存性と一致するという考察と符合しており、 ρ_s の温度依存性の評価の妥当性は確かであると言える。また先述の通りバックグラウンドの差し引きによる影響は小さく、臨界指数の値の正確性を向上するのみで、この差し引きを行わなくても ζ は依然として 1 付近の値を取る。

それぞれの圧力のデータに対して独立の操作によって見積もった臨界指数 ζ が共通して 1 という値を取っていることは、Gelsil 中超流動ヘリウム 4 がバルクや Vycor 中の超流動のような 3 次元 XY と異なる普遍性クラスに属していることを明確に示している。 $\zeta = 1$ は平均場理論で得られる結果と一致しており、上部臨界次元以上の次元性を持っていることを示している。絶対零度における Gelsil 中超流動は Eggel らによって 4 次元 XY モデルとして記述できることが示されていることから、本研究で得られた臨界指数 $\zeta = 1$ は有限温度の超流動転移においても 4 次元 XY 臨界性が見られていることを示している。しかしながら一般に量子相転移系においても有限温度の相転移は熱揺らぎが優勢となる古典的な相転移になると考えられており、今回の実験結果とは一見矛盾する。この有限温度における量子相転移の出現は、以下に議論するように、Gelsil 中ヘリウム 4 の局在 BEC 状態の存在とそこから超流動への相転移の機構に起因する。

5.2 多孔体中ヘリウム 4 の有限サイズ効果

様々な多孔体に閉じ込められた液体ヘリウム 4 の比熱の温度依存性を図 5.3 に示す。示したデータは全て過去の測定で得られているものである。Gelsil 中ヘリウム 4 は T_c 以上の温度では巨視的な超流動性を示さないものの、バルク超流動転移温度 T_λ 近傍で比熱のブロードなピークを持っており、 T_c 以上の温度で超流動転移の兆候を示している [37]。バルク液体ヘリウム 4 の超流動転移では比熱は極めて鋭い λ 形の比熱異常を示すが、多孔体中ヘリウム 4 の比熱は図 5.3 に示すようにいずれも鈍ったピークを持つ。この鈍りは有限サイズ効果に起因する。[57]

Vycor 中ヘリウム 4 のデータ [58, 59] には捻れ振動子の実験で得られた超流動転移温度 T_c を示している。 T_c は比熱のピークより低温に存在しており、その差異は Gelsil の場合ほど顕著ではないものの、同様の特徴を示している。

銅の中に形成された液体ヘリウム 4 の液滴 (droplet) は、銅の壁面上に膜厚不明な薄膜として存在し、気体ヘリウム 4 を内包した中空の球 (Hollow Sphere) を形成する。

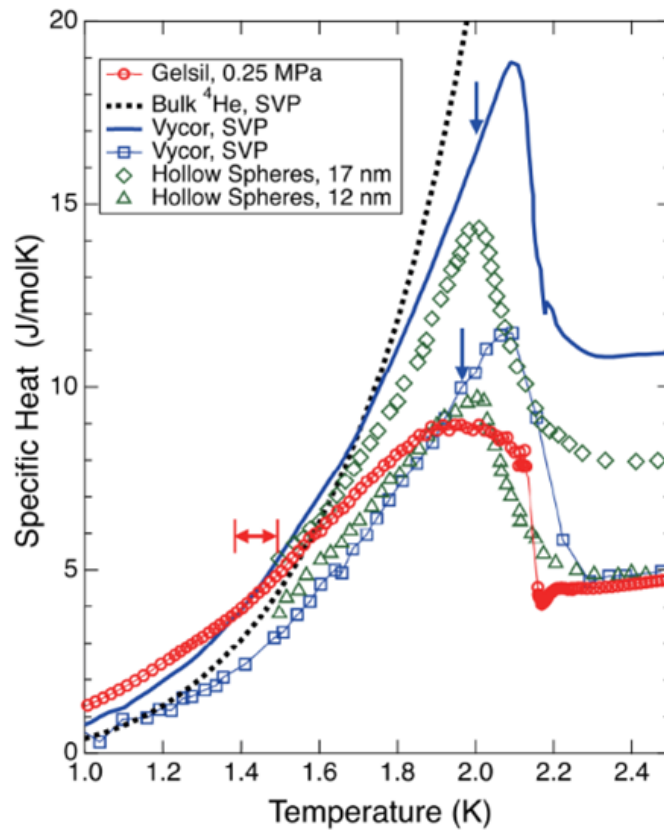


図 5.3. 過去の実験で得られている種々の多孔体に閉じ込めた液体ヘリウム 4 の比熱の温度依存性。Gelsil 中ヘリウム 4 の比熱は 0.25 MPa における熱容量測定の結果 [37] から、液体ヘリウム 4 の密度をバルク密度と仮定して算出したものである。赤矢印は巨視的な超流動転移を示す温度域を示している。グラフには比較のためバルク液体ヘリウム 4、Vycor 中ヘリウム 4[58, 59]、孔径 17、12 nm の銅箔中のヘリウム 4 の球殻状液滴 [60] の飽和蒸気圧における比熱の温度依存性を示している。青矢印は Vycor のデータに対し、超流動転移温度を示している。

図 5.3 には 17 nm と 12 nm の場合のデータを示している [60]。この系では液体ヘリウム 4 の液滴は銅の壁で分断されており、独立に成長したナノサイズの超流動体を形成していると考えられる。Gelsil の比熱異常はこのヘリウム 4 液滴のデータ、特に 12 nm のものとピーク温度やピークの高さといった特徴が良く似ていることから、この比熱のピーク温度の近傍において Gelsil 中においても有限サイズの超流動体が成長しており、それらは必ずしも巨視的な超流動性を有している必要はないと考えられる。すなわち、Gelsil 中においてナノサイズの超流動体 (局在 BEC) は互いに独立に成長し、そのサイズは Gelsil のナノ細孔のサイズ (~3 nm) に制限されていると考えることができる。

5.3 量子揺らぎのエネルギースケール

Eggel らの議論によると、Gelsil 中の局在 BEC 間の相関は不均一性を取り入れた Bose-Hubbard モデルで記述される。それぞれのサイト i は局在 BEC に対応しており、ハミルトニアンを

$$\mathcal{H} = \sum_i \left(\frac{V_i}{2} n_i^2 - \mu_i n_i \right) - \sum_{\langle i,j \rangle} (t_{ij} a_i^\dagger a_j + \text{h.c.}) \quad (5.4)$$

としてサイト間のホッピング t_{ij} で記述する。 V_i は帯電エネルギー (charging energy) であり、Josephson 接合系の類似において導入された量である。各サイトの V_i と化学ポテンシャル μ_i にランダム性を含めることで系の不均一性を取り入れる。 n_i はサイトに含まれる ^4He 原子の数である。 $\bar{n}_i = \mu_i/V_i$ とすると

$$\frac{V_i}{2} n_i^2 - \mu_i n_i = \frac{V_i}{2} (n_i - \bar{n}_i)^2 + \text{const.} \quad (5.5)$$

となり、 V_i は各サイトにおいて粒子数 n_i をそのサイトにおける平均値 \bar{n}_i に留めようとするエネルギーであることが分かる。

BEC 系において凝縮体粒子数 n_s と位相 ϕ は正準共役であり、これらの間には Heisenberg の不確定性関係 $\Delta n_s \Delta \phi \sim \hbar$ が成り立つ。そのため凝縮体粒子数の揺らぎが小さくなると、位相が激しく揺らぐことになる。 V_i は凝縮体粒子数を一定に留めようとするエネルギーであるから、このエネルギーが大きいほど位相の揺らぎが強くなることを意味する。従って V_i は量子揺らぎの効果を特徴付けるエネルギースケールになっている。

中性粒子系の場合の V_i は圧縮率 κ を用いて

$$\frac{1}{V_i} = \frac{\partial \bar{n}_i}{\partial \mu_i} = \mathcal{V}_i \nu^2 \kappa \quad (5.6)$$

と書ける。 \mathcal{V}_i は局在 BEC の体積、 ν は粒子数密度である。Gelsil の BJH 解析で得た細孔径 3 nm を用いて、細孔表面の 2 原子層 0.6 nm を不活性固相として除いた 1.8 nm を実効的な細孔直径とし、バルクの粒子数密度 $\nu \sim 2.1 \times 10^{28} \text{ m}^{-3}$ 、バルクの圧縮率 $\kappa \sim 10^{-7} \text{ Pa}^{-1}$ を仮定して計算すると、温度に換算して $V_i \sim 0.54 \text{ K}$ となる。一方で平均孔径 6.6 nm の Vycor ではこのエネルギーは 0.02 K となり、Gelsil の場合に比べてかなり小さい。この違いが Gelsil 中ヘリウム 4 の超流動転移に大きな量子効果を与えている。この見積もりでは圧縮率としてバルクの値を仮定しているが、一般に細孔内の液体では分子の運動が抑制されるため、圧縮率は更に小さくなることが期待される [53]。また ^4He 原子の数密度もバルクの値を使用しているが、凝縮体粒子数もバルク液体ヘリウムの密度に比べて孔中で抑制されていると考えられる。これらの効果を考

慮すると V_i は実際にはさらに大きくなり、本研究において全ての圧力において有限温度の T_c における超流動転移が量子系の 4 次元臨界性が観測されるに至ったと考えられる。

5.4 相関長と量子揺らぎのスケール

一般に量子 d 次元系の臨界挙動は古典的な $d+z$ 次元系として記述できる場合がある。この z は動的臨界指数であり、このことは量子揺らぎが虚時間方向のスケールをもって、実空間で広がりを持つ熱揺らぎに加わることを意味している。絶対零度における量子相転移では臨界点において量子揺らぎのスケールは発散し、理想的な $d+z$ 次元の振舞いをする。有限温度の相転移においては量子揺らぎが持つ虚時間方向のスケール $\xi_\tau = \hbar/k_B T$ は有限に留まる一方で、熱揺らぎのスケールである相関長は $\xi \rightarrow \infty$ に発散する。その結果、任意の有限温度の相転移では d 次元の古典的な相転移の振舞いになると考えられている。

Gelsil 中超流動ヘリウム 4 が有限温度において 4 次元 XY の臨界挙動を示したことから、超流動の相関長 ξ が Gelsil の細孔による極めて強い有限サイズ効果によって抑制を受けて、巨視的なスケールに発散しないまま超流動性を発現していると考えられる。この場合、相関長は Gelsil の平均孔径程度に制限されていると考えられる。Gelsil の空孔率は窒素吸脱着測定から 50% であると分かっているので、局在 BEC を平均孔径を直径とする球と近似して見積もると、平均局在 BEC 間距離は Gelsil の平均孔径と同程度か僅かに大きい程度であった。このことから相関長 ξ は孔径程度に抑制されていても局在 BEC 間の位相が相関を持てるまで成長することができると考えられる。

相関長 ξ が細孔径程度に制限されていると考えた場合、その長さスケールと量子揺らぎのスケールの大小関係が問題になる。量子揺らぎの虚時間方向のスケールが $\hbar/k_B T$ であったことから、系の集団励起の速度 (音速) c を用いて長さのスケール

$$L_\tau = hc/k_B T \quad (5.7)$$

に書き直すことができる。 h は Planck 定数である。この量は素励起の de Broglie 波長であり、系の熱的効果と量子効果の大小を分ける長さスケールと考えることができる。Gelsil 中ヘリウム 4 の熱容量測定からフォノンの音速は $c \approx 100$ m/s と見積もられており [61]、この値を用いると量子揺らぎの長さスケール L_τ は 1.5 K において 3.2 nm と計算できる。一方で Plantevin らの実験によると Gelsil 中のフォノンの分散関係はバルク液体ヘリウム 4 と一致しており [43]、この分散関係から直接フォノンの音速を見積もることができる。これを用いて量子揺らぎの長さスケールを計算すると、 $L_\tau = 7.5$ nm と見積もれた。いずれの値も Gelsil 中の細孔径と同程度かそれ以上であり、局在

BEC の相関が細孔径程度まで成長しても依然として量子効果が顕著に現れると考えることができる。

以上のように、通常の系では相転移点では相関長が発散することで巨視的な秩序状態が実現するため、有限温度の相転移点においては量子揺らぎに比べて熱揺らぎのスケールが成長することで系は古典的な d 次元系の臨界挙動をする。一方で Gelsil 中へリウム 4 の場合には相関長が細孔径程度に制限されると考えると、依然として量子揺らぎのスケールは熱揺らぎに対して小さくなく、 $d+z$ 次元の振舞いを示すと考えられる。相関長が発散せずに巨視的な超流動性を示すという考えは、次節で議論するように局在 BEC の存在に起因している。

5.5 局在 BEC 状態と超流動転移

Plantevin らの中性子散乱実験において、Gelsil 中へリウム 4 においては超流動転移温度 T_c より十分高い温度においても 3 次元的な Bose 凝縮体を特徴付ける素励起 (roton) の分散が観測された。このことは Gelsil 中に Bose 凝縮体が形成されているにも拘らず超流動性が現れていないことを意味する。局在 BEC の考えでは、Gelsil の細孔の不均一構造に起因して Bose 凝縮体が独立に存在し、それらの間で位相の相関がなく、そのため巨視的なスケールにおいて超流動性が現れない。

局在 BEC 状態と超流動転移の様子を図 5.4 に示す。局在 BEC は T_λ 近傍から Gelsil 細孔中で独立に成長し始め、それらのサイズと位相は揺らいでいる。局在 BEC は低温に向かって成長するが T_λ 近傍では細孔径で制限されて巨視的な超流動性を獲得するに至らない。 T_c より高温では依然として局在 BEC のサイズは制限されており、それらの位相は量子揺らぎにより定まっていない。 T_c 付近ではそれぞれの局在 BEC が重なり始め、それぞれの局在 BEC 間で ^4He 原子の位置交換が可能となることで位相の相関が成立し始める。すなわち局在 BEC の相関長が局在 BEC 間の距離程度になり、それぞれの位相が相関を持つようになると巨視的な超流動として観測され始める。更に低温では相関長は更に成長して、Gelsil 全体で局在 BEC 同士が重なり合うことで超流動が確立する。

この考えを相関長の温度依存性として説明したものが図 5.5 である。 T_λ ではバルク液体へリウム 4 では相関が発散するが、Gelsil 中では細孔径で制限される。相関長は T_c に近付くと再び増大し、 T_c で発散的に増大する。 T_c 以下の低温では相関長は減少して、 ξ_0 に至る。

絶対零度における相関長 ξ_0 は Josephson の関係式 [62, 63, 64]

$$\xi_0 = \frac{k_B T_c m_4^2}{\hbar^2 \rho_s(0)} \quad (5.8)$$

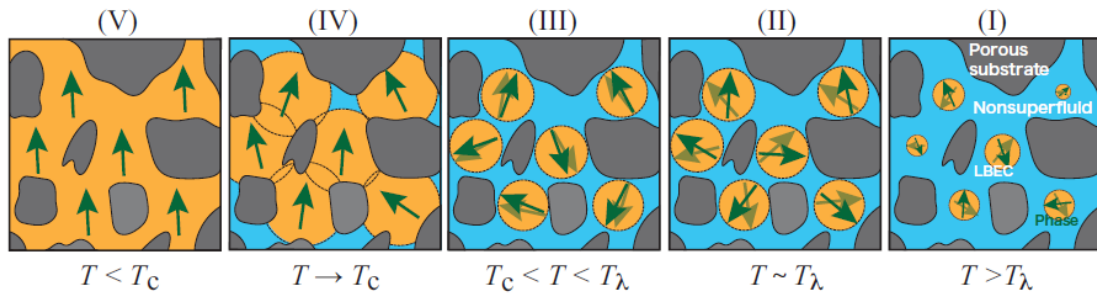


図 5.4. Gelsil 中へリウム 4 の超流動転移の概念図。(I) $T > T_\lambda$: 局在 BEC が独立して成長し始める。(II) $T \sim T_\lambda$: 局在 BEC の成長は細孔径で制限される。(III) $T_c < T < T_\lambda$ 局在 BEC 間に位相の相関が無く、位相は揺らいでいる。(IV) $T \sim T_c$: LBEC 間で位相の相関が現れ始める。(V) $T < T_c$: 局在 BEC 間の位相の相関が成長し、巨視的な超流動が確立する。

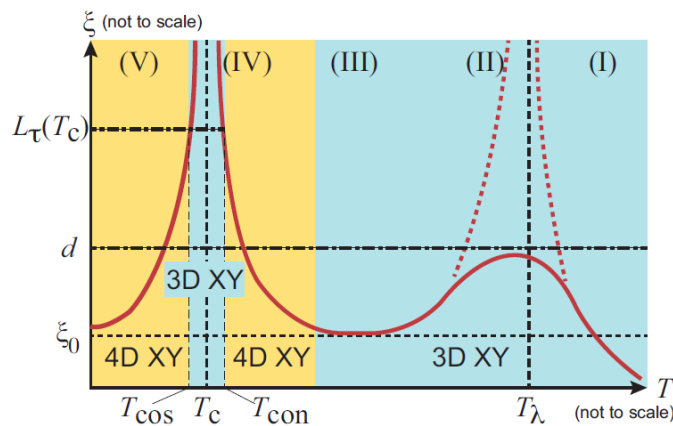


図 5.5. 相関長の温度依存性と臨界性。(I)~(V) は図 5.4 と対応している。 T_λ に向かって相関が成長するものの、細孔径で制限されて巨視的な超流動は現れない。超流動転移温度 T_c で真の相転移に伴い相関長は発散的に増大し、 T_{con} において量子揺らぎのスケール L_τ を超えると系は 3 次元 XY の臨界性を示すと期待される。 T_c の低温では再び相関長は減少し、 T_{cos} 以下の低温で L_τ より小さくなると 4 次元 XY の臨界性を示すようになる。相関長は絶対零度では ξ_0 まで減少する。

を用いて見積もることができる。ここで m_4 は ^4He 原子の質量、 $\rho_s(0)$ は絶対零度における超流動密度である。この Josephson の関係式は 3 次元系の場合のものであるが、得られる超流動密度は実空間 3 次元系でのものであるため、この表式を用いて相関長を評価する。相関長の臨界挙動を調べるため、絶対零度における超流動密度 $\rho_s(0)$ とし、臨界挙動の冪乗則

$$\rho_s = \rho_s(0) |1 - T/T_c|^{\zeta} \quad (5.9)$$

の係数を用いる。冪乗フィッティングの結果、例えば試料 B について 0.1 MPa のデータでは $\rho_s(0) = 249 \text{ kg/m}^3$ と得られ、ここから相関長は $\xi_0 = 0.33 \text{ nm}$ と得られた。これ

はバルク液体ヘリウム 4 における $\xi(0) = 0.31 \text{ nm}$ (飽和蒸気圧) と近い値を取っており、妥当な値であることが推察される。

一方で任意の d 次元系において、Josephson の関係式は

$$\xi_0(d) = \left(\frac{k_B T_c m_4^2}{\hbar^2 \rho_{s,d}(0)} \right)^{1/(d-2)} \quad (5.10)$$

と書くことができる [63]。今回の量子 4 次元性を $d = 4$ と読み替えると、このときの相関長 $\xi_0(d = 4)$ は、超流動密度として kg/m^4 の次元を持つ 4 次元超流動密度を用いて見積もられると考えられる。これは実空間の 3 次元超流動密度に対して更に量子揺らぎの軸である虚時間方向の次元が加わったものと考えなければならない。この 4 次元目の方向の密度を考えるため、虚時間軸の「格子定数」に対応する長さを知る必要がある。これは虚時間の単位で $\delta\tau$ と書いた場合、紫外カットオフエネルギー

$$E_c = \hbar/\delta\tau \quad (5.11)$$

に対応するものである。このカットオフエネルギー E_c はフォノンの最大周波数に対応するエネルギー $\hbar\omega_{\text{ph}}$ と考えられ、Gelsil 中 ^4He の素励起の分散関係から見積もることができる。素励起の de Broglie 波長の場合と同様に、フォノンの音速 c を用いて 4 次元目の「格子定数」 a_τ を

$$a_\tau = c\delta\tau \quad (5.12)$$

として見積もると、 $a_\tau = 0.16 \text{ nm}$ となり、4 次元超流動密度は $\rho_{s,4D}(0) = 1.6 \times 10^{12} \text{ kg/m}^4$ と求まった。これをもとに 4 次元相関長は $\xi_0(d = 4) = 0.23 \text{ nm}$ と求まり、3 次元の Josephson の関係式から得られた絶対零度の相関長の値 0.33 nm と概ね符合する結果が得られた。

ここで議論している相関長は本実験では直接得られてはいないが、超流動密度の臨界現象が観測されていることから、相関長はやはり超流動転移温度 T_c では発散的な振る舞いをしなければならない。量子相転移の考えに基づいて、実空間における熱揺らぎのスケールである相関長 ξ が相転移点 T_c で発散的に増大し、量子揺らぎのスケール L_τ を超えると、系の臨界性は熱揺らぎに支配された 3 次元性を示すと期待される。相関長が絶対零度において 0.33 nm という値から相転移点 T_c に向かって増大し、臨界現象が観測されている温度において $L_\tau = 7.5 \text{ nm}$ まで成長すると考えると、相関長は T_c 近傍で 1~2 桁変化しており、この急激な振る舞いが超流動臨界現象を観測可能にしていると考えられる。Gelsil 中ヘリウム 4 の超流動転移温度 T_c が実験的にどのような温度として観測されているか、という問題があるが、より転移温度近傍に近付いた時、相関長は量子揺らぎのスケール L_τ を超えて成長し、臨界現象は 4 次元から 3 次元へのクロスオーバーが生じると考えられる。

図 5.1(b) を一見すると、試料 B では超流動転移温度 T_c 近傍で超流動密度の両対数プロットは傾きが小さくなり、異なる臨界指数 (3 次元 XY の場合 2/3) に近付いているように思われる。しかしながらこの振る舞いは超流動転移の鈍りの影響を受けているため、現時点で直ちに結論付けることはできない。超流動転移の鈍った振る舞いがクロスオーバーを反映していると仮定すると、図 5.2 において定義し直した T_c ではなく、 T_{onset} で臨界現象を議論する方が妥当であると考えられるが、 T_{onset} を用いて臨界現象を調べると、前述の通り $\zeta = 2$ となってしまう (共鳴周波数の立ち上がりも下に凸な温度依存性を持っているため、 ζ は 1 を超えることになる)。図 5.2 のように T_c を定義し直している以上、超流動転移が鈍っている部分を注目すると両対数プロットの原点はずれており、臨界現象は正確に議論できない。また同様の細孔分布を持つ試料 A において、より T_c 近傍まで $\zeta = 1$ の臨界性を持っていることは説明がつかないため、本研究の範疇では 3 次元-4 次元クロスオーバーが観測されているとは結論付けられない。この問題の解決には、鋭い超流動転移を示す Gelsil 試料に対して更に T_c 近傍を詳細に調べる必要がある。

有限温度の相転移において 4 次元 XY の臨界現象が実験的に得られたことは、相転移の機構が量子揺らぎが顕著になるような微視的なスケールで起きているということの意味する。上述の相転移の描像では局在 BEC が T_c より十分高温から独立に存在し、それぞれが Bose 凝縮体としての秩序を持っていること、それらが最近接の凝縮体と繋がることで相関が連鎖的に広まり、細孔径程度の相関が巨視的な秩序に増幅されることが重要である。有限温度の相転移点において量子相転移の性質が見られるのは、これらの条件が合わさった Gelsil 中ヘリウム 4 の超流動転移に特有の現象である。

5.6 相図と臨界圧力

Gelsil 中ヘリウム 4 の超流動転移温度 T_c と圧力の関係を $P-T$ 相図として図 5.6 に示す。試料 B については臨界現象を議論するための臨界温度としての T_c ではなく、超流動が実験的に観測され始める温度 (図 5.2 における T_{onset}) を示している。図には過去に捻じれ振動子で得られた T_c も比較のために示している。Helmholtz 共鳴で得られた T_c は試料 A、試料 B 共に捻じれ振動子の T_c より高く、全体的に一様に高温側シフトしたように分布している。捻じれ振動子では超流動転移が明瞭でなく、実際より T_c を低く見積もっていた可能性があるが、Helmholtz 共鳴で得られた相境界を絶対零度まで外挿した際に臨界圧力が捻じれ振動子とは大きく異なっており、 T_c の不確実性のみでは説明できない。過去の研究において多孔質ガラスの加熱脱気処理の時間が超流動転移温度 T_c に影響を与えるという結果が得られており、 T_c は多孔体の構造の詳細に極めて敏感であることが示唆されている [65]。今回の T_c の不一致の原因は明らかではないが、同様に Gelsil 中の細孔分布の詳細によるものと考えられるが、Helmholtz

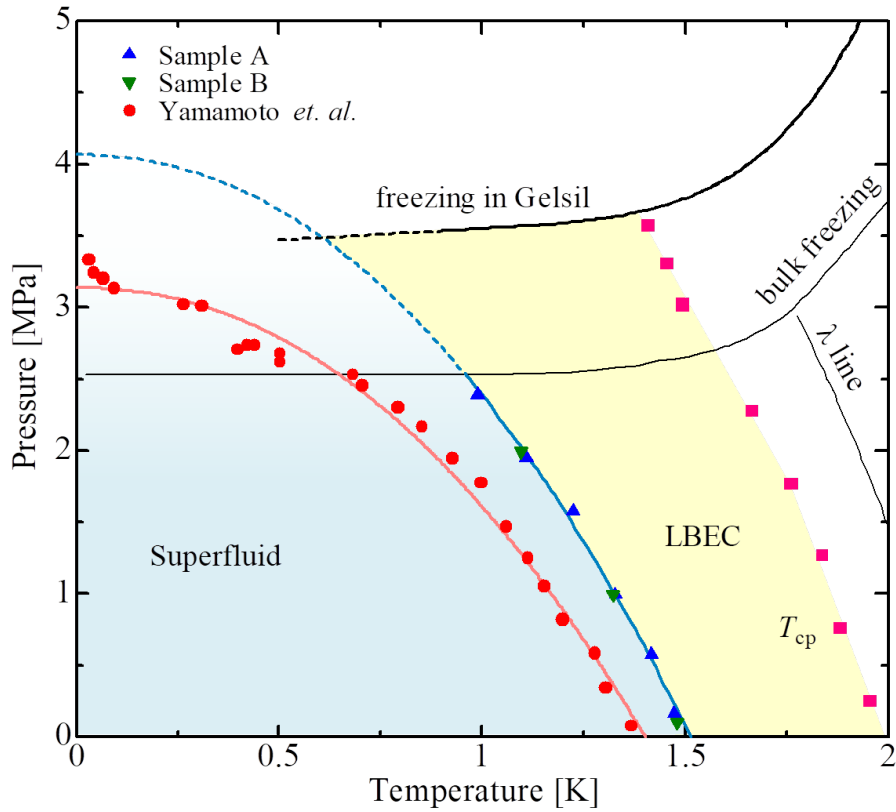


図 5.6. Gelsil 中ヘリウム 4 の相図。比較のため捻れ振動子 (TO) で得られた超流動転移温度 T_c も載せている。図中の実線は $P_c(0) - P_c(T) \propto T^{2.13}$ に対するフィッティング曲線である。細い曲線はバルクヘリウム 4 の固化曲線と超流動転移の相境界線 (λ 線) を示し、また太い曲線は Gelsil 中固化圧力を示している。

共鳴実験において異なる試料 A と B では転移温度 T_c は良く一致しており、実験方法に何らかの影響を受けている可能性も考えられる。

図中の実線は Eggele らが行った相境界線の評価を本研究の実験結果に適用したものである。相境界線は

$$P_c(0) - P_c(T) \propto T^{1/z\nu} \quad (5.13)$$

と書いて、4次元 XY の場合には臨界指数はそれぞれ $z = 1$ 、 $\nu = 1/2$ であるから、結局指数は $1/z\nu = 2$ となる。Eggele らは捻れ振動子で得られた T_c に対してこの冪乗則フィッティングを行い、 $P_c(0) - P_c(T) \propto T^{2.13}$ なる指数で良く合うことを示した。これは 4次元 XY で期待される指数 $1/z\nu = 2$ に近い値である。本研究ではこの指数 2.13 を採用してフィッティングを行った。バルクの固化圧力以上のデータが無いので量子臨界点近傍の振舞いは不明であるが、このフィッティングの結果からは臨界圧力は 4.08 MPa と得られた。この臨界圧力は捻れ振動子で得られている 3.3 MPa よりかなり高い。また過去に得られている Gelsil 中ヘリウム 4 の固化圧力はバルクの固化圧

力より高いがおよそ 3.7 MPa であり、本研究で得られた臨界圧力より低い [44]。本研究で使用した Gelsil 試料におけるヘリウム 4 の固化圧力は不明であるが、この値をそのまま適用すると、量子相転移の臨界圧力は固化圧力より高いことになる。その場合量子臨界点は固相に埋もれて見えなくなってしまうと考えられるが、本研究の結果ではその場合でも量子相転移の効果が高温低圧で十分観測されている。

前述の通り、超流動転移温度 T_c 近傍では 3 次元-4 次元クロスオーバーが生じると期待されるが、相境界の形状は依然として 4 次元 XY として期待される臨界性を示している。2.6 節で議論したように、クロスオーバー温度は指数 (rounding exponent) $\theta = 1/z\nu$ により $P_*(0) - P_*(T) \propto T^\theta$ と記述され (P_* はクロスオーバー圧力)、4 次元 XY としての超流動相-非超流動相の境界線と同じく $\theta = 2$ である。この 3 次元-4 次元クロスオーバーは相関長の発散的増大に伴うものであるため、 T_c の高温側でも生じるはずである (図 5.5 の T_{cos} と T_{con} に対応する)。従って T_c はこのクロスオーバー温度に挟まれ、同様の臨界性、すなわち $P_c(0) - P_c(T) \propto T^2$ に支配されると理解することができる。

多孔体の不均一性は虚数時間方向に相関を持ち (correlated disorder[66])、量子臨界点の近傍ではこの不均一効果が強まることで、系の普遍性が 4 次元 XY から更に別のクラスに変化することが理論研究により示唆されている [10, 11]。捻れ振動子を用いた先行研究で得られた T_c が量子臨界点近傍で $P_c(0) - P_c(T) \propto T^2$ から逸脱していることは、4 次元 XY から別のクラスに移っていることを示している可能性があるが、明確な結論には至っていない。本研究ではバルク固化圧力以上の圧力では実験できなかったため、やはり量子臨界点の近傍の情報は得られておらず、量子臨界点近傍の臨界性は興味深い問題として残っている。

5.7 超流動密度のスケーリング

前節の議論により臨界圧力を評価することができた。バルクの固化圧力以上のデータが無い場合量子臨界点近傍の振舞いは不明瞭であるが、得られた臨界圧力を用いて Gelsil 中ヘリウム 4 の超流動密度 ρ_s の評価を行う。

有限サイズスケーリングにおいて、相転移の制御パラメータ δ に対して自由エネルギー密度 f_s はスケーリング関数 F を用いて

$$f_s \sim F(\delta, L) \sim \delta^{x_{f_s}/x_\delta} F(\delta^{-1/x_\delta}/L) \quad (5.14)$$

と書ける。ここで x_{f_s} と x_δ はそれぞれ f_s と δ のスケーリング次元、 L は実空間における長さスケールを表す。 $\nu = 1/x_\delta$ であり、 $\delta \sim \xi^{-1/\nu}$ であるから、

$$f_s \sim \delta^{\nu x_{f_s}} F(\xi/L) \quad (5.15)$$

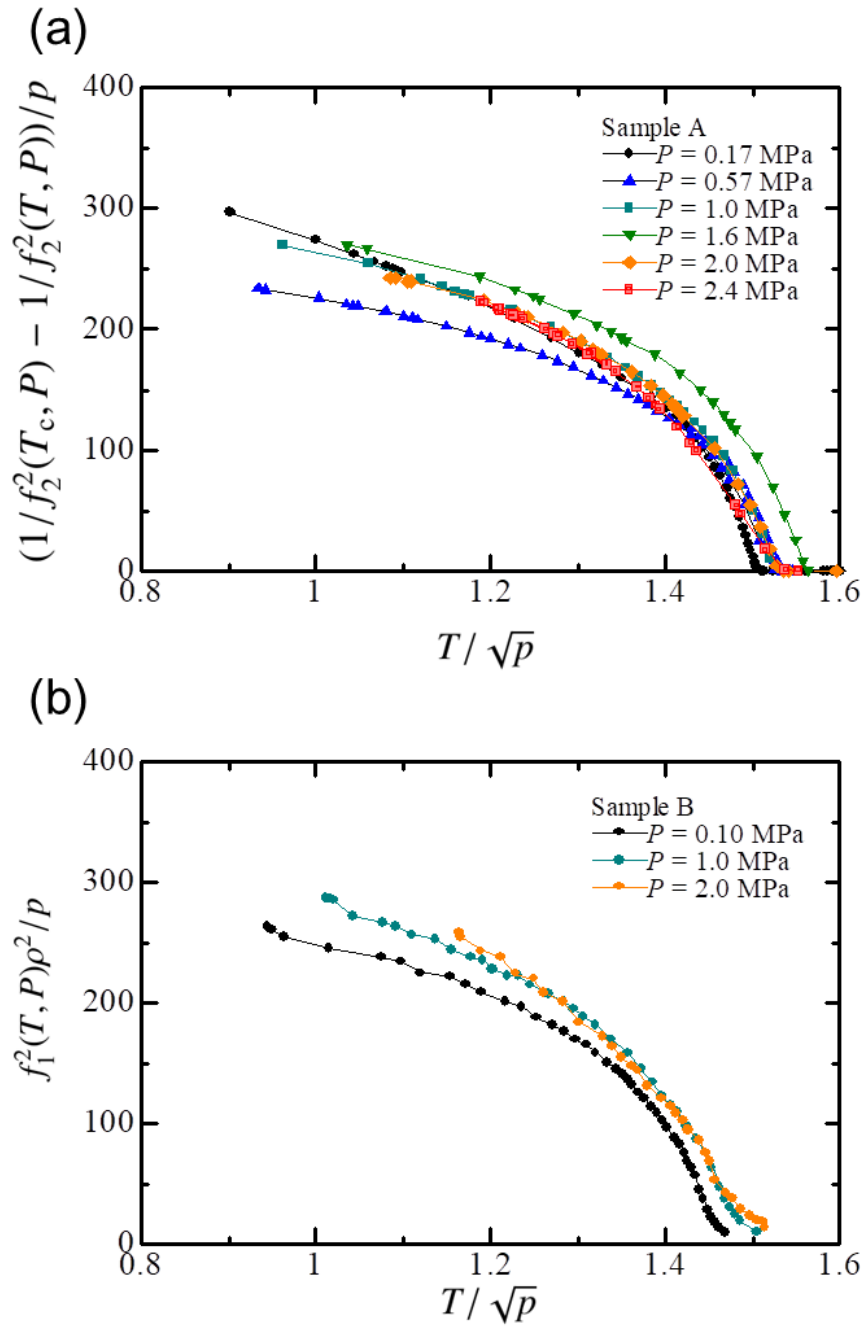


図 5.7. (a) 試料 A と (b) 試料 B における Gelsil 中ヘリウム 4 の超流動密度のスケージング。縦軸は共に ρ_s に対応する量を換算圧力 $p = 1 - P/P_c$ で割ったもので、横軸は温度を換算圧力の平方根 \sqrt{p} で割ったもの。

となる。自由エネルギー密度のスケーリング次元は d であるから、量子揺らぎの虚時間軸のスケール $\hbar\beta = \hbar/k_B T$ に対するスケーリングも含めて

$$f_s \sim F(\delta, L, \beta) \sim \delta^{\nu(d+z)} F(\xi/L, \xi^z/\beta) \quad (5.16)$$

と書ける。超流動密度 ρ_s は自由エネルギーにおける位相の硬さ (helicity modulus) として定義される。すなわち位相の空間的变化 $\Delta\phi$ による自由エネルギーの変化量 Δf により

$$\Delta f \sim (\Delta\phi/L)^2 \rho_s \quad (5.17)$$

と書ける。 Δf が自由エネルギーのスケーリング (5.16) と式 (5.17) を満たすためには、

$$\rho_s \sim \xi^2 \delta^{\nu(d+z)} \sim \xi^{2-d-z} \quad (5.18)$$

であることになる。有限温度の超流動密度 ρ_s は虚時間方向のスケール β と相関長の広がり ξ^z の比に依存するスケーリング関数 F_{ρ_s} で記述できるとすると、

$$\rho_s \sim F_{\rho_s} \left(\frac{\xi^z}{\beta} \right) \xi^{2-d-z} \quad (5.19)$$

である。制御パラメータが圧力であるとする ($\delta = P - P_c$)、換算圧力 $p = 1 - P/P_c$ として $\xi \sim p^{-\nu}$ であるから、

$$\rho_s \sim F_{\rho_s}(T/p^\nu) p^{\nu(d+z-2)} \quad (5.20)$$

となる。4次元 XY の臨界指数 $\nu = 1/2$ を用いると、 $\nu(d+z-2) = 1$ であるから、超流動密度のスケーリングは

$$\frac{\rho_s}{p} \sim F_{\rho_s}(T/\sqrt{p}) \quad (5.21)$$

と書けることになる。

図 5.7 にそれぞれ試料 A、試料 B に対して得られた超流動密度に対応する量について、換算圧力 $p = 1 - P/P_c$ を用いて横軸に T/\sqrt{p} 、縦軸にそれぞれ $(1/f_2^2(T_c, P) - 1/f_2^2(T, P))/p$ 、 $f_1^2(T, P)\rho^2/p$ としたプロットを示す。試料 A では R_1 モードの温度依存性が正確に測れていないため、 R_2 モードの共鳴周波数 f_2 を用いて見積もった ρ_s を用いて評価しており、試料 B ではダイアフラムの不安定性のために各圧力におけるデータに対して f_2 を用いた評価では ρ_s の大きさを正しく比較できなかったため、 R_1 モードの共鳴周波数 f_1 を用いている。

$$\frac{1}{f_2^2(T_c)} - \frac{1}{f_2^2(T)} = \frac{\pi\alpha}{2(\sigma_1 + \sigma_2)} \rho_s \quad (5.22)$$

であったので、 f_2 には超流動密度 ρ_s 以外に圧力に陽に依存する量はない。一方で

$$f_1^2(T) = \frac{1}{4\pi^2} \frac{\rho_s}{\rho^2} \beta \frac{8\pi(1/\sigma_1 + 1/\sigma_2)^{-1}}{A_d^2} \quad (5.23)$$

であったので、 f_1 には ρ_s 以外ではバルク液体ヘリウム 4 の密度 ρ が圧力変化する。液体ヘリウム 4 の密度として既知の値を用いて ρ_s の振舞いを $f_1^2(T, P)\rho^2$ として評価している。

図 5.7(a) に示すように 2.5 nm 試料では少しデータにばらつきがあるもののある程度スケーリングできている様子が見られる。最低圧力である 0.17 MPa のデータは ρ_s の立ち上がりの位置 T_c/\sqrt{p} が僅かに小さく、1.0 MPa では少し高いが、他のデータでは良く一致している。縦軸の $(1/f_2^2(T_c) - 1/f_2^2(T))/p \propto \rho_s/p$ は 0.57 MPa では低温で少しずれており、1.6 MPa のデータは T_c/\sqrt{p} の差の分だけ全体がずれている。図 5.7(b) に示すように、3.0 nm 試料でもある程度スケーリングができているように見られる。最低圧力である 0.10 MPa のみ T_c/\sqrt{p} が僅かに小さくなっているが、全体の振舞いは良く一致している。

これらのスケーリング評価におけるデータごとの差異の原因として以下のことが考えられる。まず 2.5 nm 試料に対しての ρ_s の評価は連成振動の基本モードの共鳴周波数 f_2 から見積もっており、この時にバックグラウンドを差し引く処理を行っている。これは厳密には T_c の近傍においてのみ妥当で、 T_c から離れた低温では妥当性を失う可能性がある。また圧力に依存する物理量は Gelsil 中超流動密度 ρ_s とバルク液体ヘリウム 4 の密度 ρ のみであるとしたが、ダイヤフラムの張力 $\sigma_{1,2}$ は実際にはバルク液体の昇圧に伴いわずかに変化している可能性がある。またバルク液体ヘリウム 4 の圧力自体も、容量型歪み圧力計を用いて測定しているが、これは一般に昇圧過程と減圧過程で静電容量に少しではあるがヒステリシスが生じるため、測定した圧力が僅かにずれている可能性がある。これらの要因が考えられるが、各データは概ね良くスケーリングできており、4 次元 XY モデルに基づく臨界現象を良く表していると言える。また各データの間の差異は臨界圧力の値の見積もりに依存するが、圧力に対して系統的にずれている様子はなく、良くスケーリングできていることから、臨界圧力は前節の議論で得た 4.08 MPa という値が妥当であることが分かる。

Eggel らの理論研究の結果から、4 次元 XY モデルにおいては超流動密度の圧力に対する臨界挙動は $\rho_s \propto p$ 、また超流動相の相境界線の形状は $T^2 \propto p$ であった。このことから ρ_s/p が T/\sqrt{p} を変数とする関数でスケーリングされることは理解できる。すなわち、このスケーリングが成功していることは、任意の有限温度における $T/\sqrt{p} (\propto T/T_c)$ に対して、 $\rho_s \propto p$ が成り立っていることを示している。前節までの議論では温度に対する臨界性として $\rho_s \propto t$ を示してきたが、圧力に対する臨界性も 4 次元 XY 臨界性を示していると言える。

第 6 章 散逸異常と超流動転移

本章では Gelsil 中ヘリウム 4 の超流動転移に伴う散逸異常の起源について議論する。局在 BEC 状態から超流動相への転移に際して、量子揺らぎにより失われていた巨視的な位相のコヒーレンスが回復する。これにより超流動転移温度の低温側の近傍で散逸が生じると考えられる。本章ではまず散逸について得られた実験結果を各温度での振舞いから 3 つの寄与に分解し、そうして得られた散逸異常に対して、超流動転移の機構に基づいて立てたモデルによる散逸エネルギーを比較する。試料 A の散逸は機械的不安定性を受けて解析が困難であることから、本章の考察はバルク液体の散逸も含めてバルク超流動転移以下の全ての温度において散逸がよく説明できている試料 B の結果のみを用いて行う。

6.1 全温度域の散逸の温度変化

図 6.1 に各圧力において試料 B を用いて得られた R_2 モードの散逸 Q^{-1} の温度変化を示す。それぞれのデータに重ねて示している実線は同時に測定していた音叉型水晶振動子の散逸を、データに合うように定数倍して重ねたものである。各圧力のデータに対して $T_c < T < T_\lambda$ の散逸の振舞いに基本的に良く合っていることから、Helmholtz 共振器がバルク液体ヘリウム 4 から受ける散逸の機構は水晶振動子の場合と本質的に同じであると考えられる。しかしながら Helmholtz 共振器の構造は煩雑で、流体力学は境界条件に対して敏感であるためその解析は困難であり、散逸を直接説明するのは容易ではない。また散逸の原因となるバルク液体ヘリウムの密度 ρ と粘性係数 η は温度と圧力の両方に依存して変化する。各圧力におけるデータは実際には測定の間に温度に依存して変化しているため、これらの物性値を文献値として正確に知ることはできない。そのため以下ではバルク液体ヘリウム 4 の散逸は音叉型水晶振動子を用いて実際に得られた散逸をもとに議論する。

0.1 MPa のデータでは T_λ より少し低温の 2 K 付近で散逸が乱れた振舞いを行っているが、これは共振器を取り巻くバルク液体ヘリウム 4 中で第二音波の定在波が励起し、 R_2 モードの共鳴と結合したためであると考えられる。このことは有限要素法解析によってモード解析を行うことで確認した (補遺 B)。1.0 MPa と 2.0 MPa のデータでは T_c と T_λ の近傍を除いて広範囲の温度で散逸が大きくなっているが、これは第二音波の音速の温度依存性が極大を持ってブロードに変化する点で広範囲に亘って定在波と共鳴の結合が生じているためである。このような逸脱を除けば、いずれの圧力においても水晶振動子の振る舞いと R_2 モードの散逸は基本的に一致しているため、これをもとに T_c 以下の散逸の変化量を議論する。

T_c 以下では 0.1 MPa、1.0 V_{pp} のデータに顕著に見られるように、 T_c 直下から低温

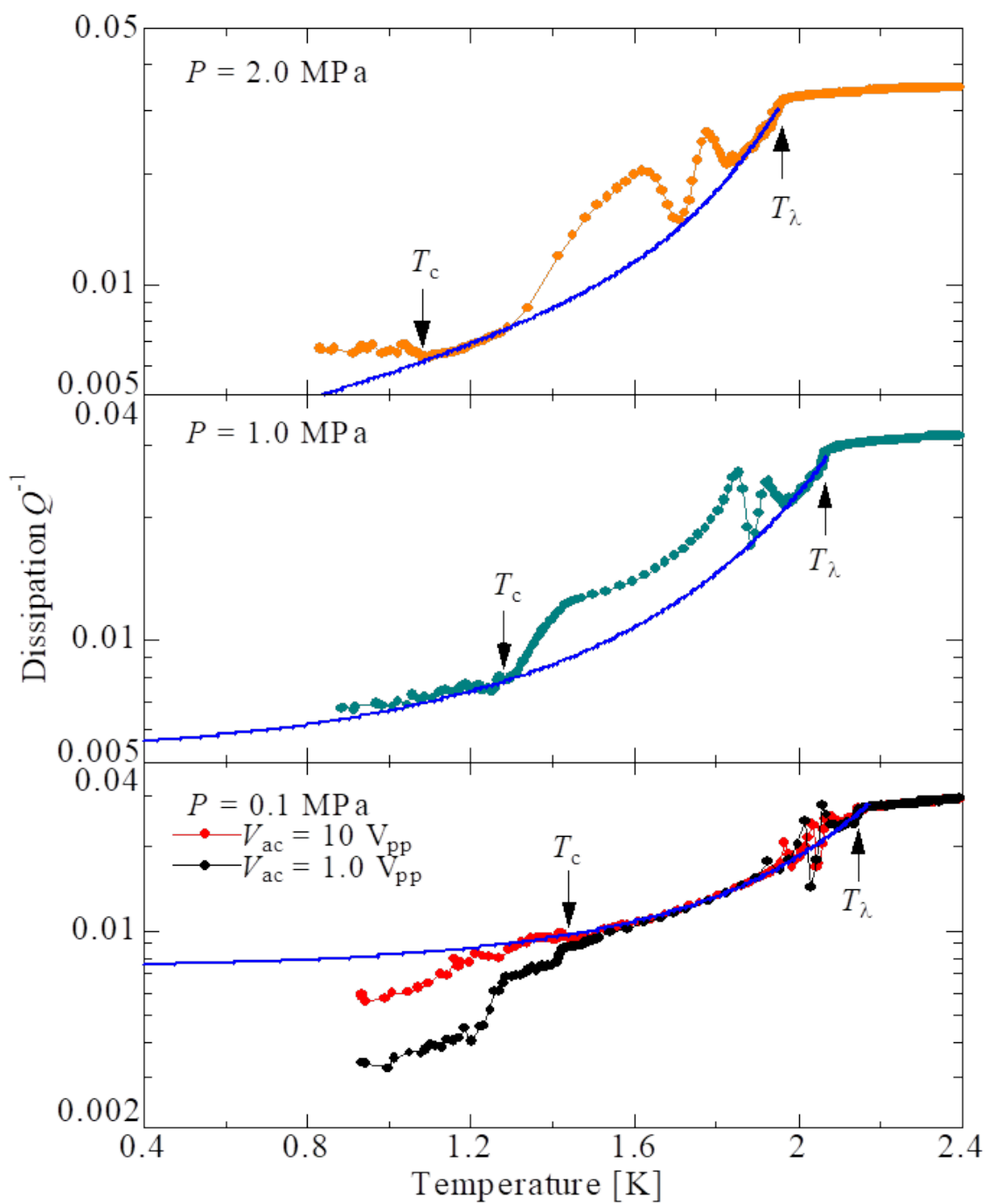


図 6.1. 試料 B における R_2 モードの散逸 Q^{-1} の温度変化。実線は音叉型水晶振動子で同時に測定した $\sqrt{\rho\eta}$ の温度依存性を合わせたもの。

に向かって散逸が急激に減少している。この振舞いは概形としては多孔体中の超流動密度 ρ_s に比例した減少である。この振舞いは過去に Vycor を用いて行った Helmholtz 共鳴実験においても見られており、これは多孔体を通る質量流の分だけ共振器内の液体ヘリウムが自由に流れられるようになったために共振器全体として散逸が減少するためである。一方で Gelsil では 0.1 MPa において 1.3 K 付近でピークを持つような散逸が加わったような振舞いをしており、これは Vycor では見られていない。この Gelsil 特有の散逸は $10 V_{pp}$ でも見えており、 T_c 直下ではなくより低温の 1.2 K 付近から散逸が減少しているように見えるのは、Gelsil 中の超流動流による散逸の減少とこの散逸異常が重なっているためである。同様の振舞いが 1.0 MPa と 2.0 MPa においても現れていると考えられる。

まとめると、Helmholtz 共振器において散逸は以下の 3 つの要因からなる。

- バルク空間を占める液体ヘリウム 4 から受ける粘性散逸
- Gelsil 中の超流動流による散逸減少
- Gelsil 中超流動転移に伴う散逸異常

バルク液体の粘性散逸は全温度域において存在し、 T_λ から低温ではバルク液体の超流動転移に伴い急激に減少している。Gelsil 中超流動流による散逸の減少は T_c 以下の全温度において存在し、Gelsil 中超流動転移に伴う散逸異常は T_c 直下の温度に局在してピーク状に存在している。

6.2 共振器のエネルギー

散逸するエネルギーを具体的に計算するにあたって、共振器が外力によって蓄えるエネルギーを求めておく。外力 F はバイアス電圧 V_b とドライブ電圧 $V_{ac} \cos(\omega t)$ を与えたときの静電気力であり、

$$F = \frac{(V_b + V_{ac} \cos(\omega t))^2}{2\epsilon A_d} C_1^2 \quad (6.1)$$

である。ここで ϵ は誘電率、 A_d はダイアフラムの面積、 C_1 は駆動ダイアフラムと電極の間の静電容量である。 $V_b \gg V_{ac}$ であるから、この外力のうち振動する成分を取り出すと

$$F \simeq \frac{V_b V_{ac}}{\epsilon A_d} C_1^2 \cos(\omega t) \quad (6.2)$$

となる。駆動ダイアフラムの変位を $x_1(t) = x_{1,0} \sin(\omega t)$ と書くと、 $dx_1 = \omega x_{1,0} \cos(\omega t) dt$ であるから、静電気力が共振器にする仕事として、共振器が蓄

えるエネルギー E は

$$\begin{aligned}
 E &= \int \frac{V_b V_{ac}}{\epsilon A_d} C_1^2 \cos(\omega t) dx \\
 &= \int_0^T \frac{V_b V_{ac}}{\epsilon A_d} C_1^2 x_{1,0} \omega \cos(\omega t)^2 dt \\
 &= \frac{V_b V_{ac}}{\epsilon A_d} C_1^2 \pi x_{1,0}
 \end{aligned} \tag{6.3}$$

となる。Q 値の定義 $Q = 2\pi E / \Delta E$ により、Q 値とエネルギー E から散逸エネルギー ΔE が求まる。実験的に得られるのは検出ダイアフラムの変位 x_2 であるが、 T_c より高温では共振器内のバルク液体ヘリウム 4 が非圧縮であるとする、2つのダイアフラムの変位は等しい ($x_1 = x_2$)。検出ダイアフラムの変位 x_2 はロックインアンプで検出した電圧の実効値を V_{rms} とすると

$$x_2 = \frac{\epsilon A_d}{\omega V_b G C_2^2} \sqrt{2} V_{rms} \tag{6.4}$$

であるので、共鳴点 f_2 において

$$E = \frac{V_{ac}}{\sqrt{2} f_2 G} \left(\frac{C_1}{C_2} \right)^2 V_{rms} \tag{6.5}$$

の関係を用いてエネルギーを計算できる。ここで G はプリアンプのゲインである。

T_c 以上の温度では $x_1 = x_2$ であるので、この関係を用いてエネルギーを計算できる。一方 T_c 以下では Gelsil 中の超流動流が存在するためにダイアフラムの変位は異なる。超流動流による変位の変化は張力の比で分配されてほとんど検出ダイアフラムの変位に現れ、駆動ダイアフラムは超流動流が存在しないかのような変位をする。このように考え、散逸と振幅は $Q^{-1} \propto 1/f_2 V_{rms}$ の関係を用いて、駆動ダイアフラムの変位 x_1 は T_c 以下でもバルクの散逸から見積もる。

6.3 超流動転移温度以下の散逸：超流動流による散逸の減少

超流動転移温度 T_c 以下では Gelsil 中に超流動流が生じるため共振器の内外の液体ヘリウム 4 が繋がって、共振器全体の散逸が減少する。この振舞いは Vycor においてもみられており (補遺 D) 多孔体の種類に依存せず共振器の特性として必ず生じるものである。図 6.2 に、音叉型水晶振動子の散逸から見積もったバルク液体の粘性散逸を引き去り、Gelsil 中の超流動に起因する部分のみを抜き出した散逸の温度依存性を示す。散逸はエネルギーに換算して T_c での値から測った量として示しており、温度は比較のため T_c で規格化している。図 6.2(a) には 0.1 MPa において異なるドライブ電

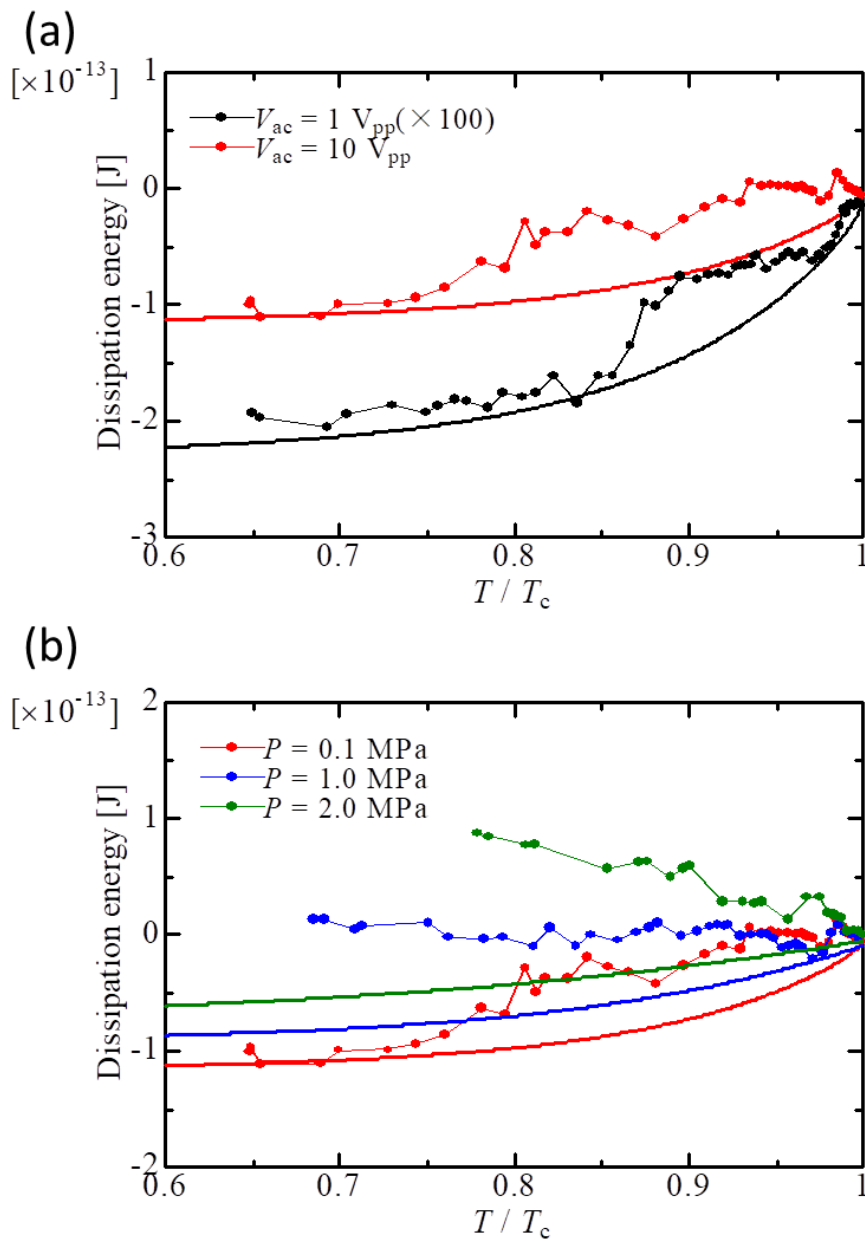


図 6.2. 超流動転移による散逸エネルギーの変化量の温度依存性。(a) 0.1 MPa における散逸のドライブ電圧依存性。(b) 散逸の圧力依存性。

圧 $1 V_{pp}$ と $10 V_{pp}$ のデータを示している。 $1 V_{pp}$ のデータはエネルギーが $V_{ac} V_{rms}$ に比例して小さくなるため、振幅 V_{rms} はドライブ電圧に比例すると考えて 10^2 倍して合わせている。多孔体中の流れによる散逸の減少量は多孔体の流路と共振器の構造の両方の詳細に依存すると考えられ、定量的な評価は困難であるが、超流動質量流に比例すると考えられる。質量流は超流動密度 ρ_s と超流動速度 v_s 、流路の形状で決まるが、このうち温度依存する量は超流動密度 ρ_s のみであるから、質量流による散逸の減少量

は $\rho_s(T)$ に比例すると考えられる。図中の実線は R_1 モードの共鳴周波数 f_1 から実験的に見積もった ρ_s の温度依存性を定数倍して低温で一致するように合わせたものである。

図 6.2(b) に、異なる圧力における散逸の温度依存性を示している。0.1 MPa では散逸は T_c 近傍でブロードなピークを持って低温では Gelsil 中超流動流によるものとして期待される散逸の温度依存性に近づいている。一方で 1.0 MPa では散逸はほとんど温度依存せず一定、2.0 MPa では低温に向かって単調に増加する振舞いが見られた。これらの場合でも Gelsil 中には超流動流が生じているため、 T_c 以下の温度では散逸に減少する寄与をもつはずであるから、同様に各圧力に対する ρ_s を用いて散逸を評価している。これらの場合、0.1 MPa のように低温で合わせることができないので、0.1 MPa の場合を参考に曲線を引いている。10 V_{pp} のデータは条件が同じなので、圧力による違いは ρ_s の圧力変化のみであるとしている。

以上のように T_c 以下の散逸は 0.1 MPa では Gelsil 中の超流動流による散逸の減少を示しており、そこからデータとの差を取ることで T_c 近傍の散逸異常を引き出すことができる。次節ではこのブロードなピーク状の散逸異常を定量的に考察する。1.0 MPa と 2.0 MPa ではピークのような構造は見えていないが、超流動流による散逸減少の効果と散逸異常が重なってこのような振舞いをしていると考えられるので、同様の差し引きを行って散逸異常を比較する。

6.4 超流動転移に伴う散逸異常：局在 BEC の位相整合

超流動転移温度 T_c の直下に見られる散逸異常は Vycor では見られない Gelsil 特有のものであることから、量子相転移の存在に関連のある現象であると考えられる。すなわち局在 BEC 状態から超流動相への転移の際に、何かしらの散逸の原因になる現象が生じているということになる。 T_c 近傍でピーク状の散逸を示すことから、超流動密度の成長に対応した現象であると考えられる。

前章での量子相転移の議論の通り、局在 BEC 状態ではそれぞれの凝縮体は位相を持っているもののその細孔サイズのために顕著な量子揺らぎによって揺らいでおり、局在 BEC 間で位相の相関が存在していない。局在 BEC の相関長が低温で成長して互いに重なりだすと、位相のコヒーレンスを獲得して巨視的な超流動性を示すようになる。位相の量子揺らぎは粒子数が強く固定されるため、局在 BEC 間の位相コヒーレンスはそれらの間の粒子の位置交換 (移動) によって達成される。この局在 BEC の描像によると、細孔中で孤立していた凝縮体同士が繋がって位相のコヒーレンスを持つようになるとき、その直前に位相が揃っている必要はなく、従っていずれかの凝縮体の位相が強制的に捻じ曲げられることになる。 T_c は多孔体中で位相コヒーレンスを獲得した凝縮体の数が巨視的な量となって超流動密度 ρ_s が観測され始める温度であり、

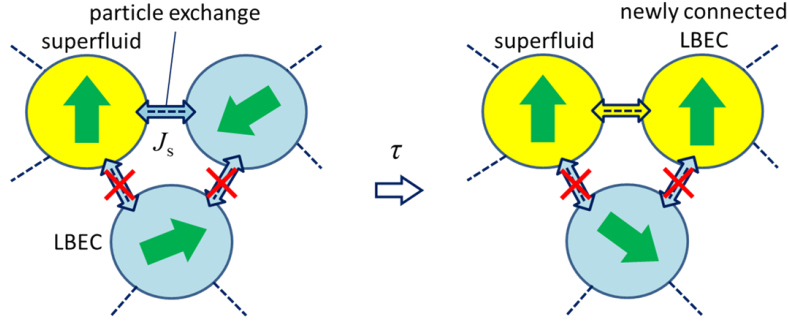


図 6.3. 局在 BEC が巨視的超流動に加わる時の位相整合プロセスの概念図。位相コヒーレンスを持たない局在 BEC(青色)は、巨視的超流動に接続した局在 BEC(黄色)との間で粒子のやり取りが可能であれば、時間 τ の後位相が揃えられて巨視的超流動に加わる。

T_c 以下の温度では巨視的な超流動に新たに局在 BEC が参加していく。この新しく超流動に加わった局在 BEC の位相が、巨視的な超流動との間に位相のコヒーレンスを獲得する際に捻じ曲げられて散逸となる (図 6.3)。

以上のように考えて、局在 BEC が新たに超流動に加わった時に位相の不整合を解消するのに必要なエネルギーを見積もる。凝縮体中で位相が変化するときのエネルギーは Josephson-Anderson の位相発展方程式 [17] から求められる。すなわち凝縮体内の空間的な任意の 2 点間の位相差 $\Delta\phi$ が変化するときの化学ポテンシャル差 $\Delta\mu$ は

$$\frac{\partial\Delta\phi}{\partial t} = -\frac{\Delta\mu}{\hbar} \quad (6.6)$$

と書ける。今の議論の場合、この空間的な 2 点とは位相コヒーレンスが確立した巨視的な超流動体と、そこに新たに加わる局在 BEC を考えれば良い。ある典型的な時間スケール τ の間に位相差が $\Delta\phi \rightarrow 0$ と変化したときの化学ポテンシャル差の変化量 $\Delta\mu$ は

$$\Delta\mu = \frac{\hbar\Delta\phi}{\tau} \quad (6.7)$$

であり、これは 1 粒子あたりのエネルギーなので、局在 BEC の平均凝縮体粒子数を \tilde{n} とすると、1 つの局在 BEC の位相が変化したときのエネルギーは

$$\tilde{n}\Delta\mu = \tilde{n}\frac{\hbar\Delta\phi}{\tau} \quad (6.8)$$

となる。このように位相変化によって生じるエネルギー損失は、位相を捻じ曲げられた凝縮体の数に比例して大きくなるので、巨視的な超流動の位相は定まったまま、新たに加わる局在 BEC の位相が曲げられる方がエネルギー損失は小さい。この平均凝縮体粒子数 \tilde{n} は局在 BEC 中の凝縮体密度 ρ_L を用いて $\tilde{n} = \rho_L \mathcal{V}/m_4$ と書ける。 \mathcal{V} は局在 BEC の平均体積で、Gelsil 中の平均細孔径を直径とする球として見積もられる。

m_4 は ^4He 原子の質量である。

局在 BEC はバルク超流動転移温度 T_λ から低温で成長し、Gelsil 中超流動転移温度 T_c では十分に成長していると考えられる。定性的にバルク超流動密度と同様の成長をすると仮定すると、 T_c 程度の低温では局在 BEC の凝縮体密度 ρ_L は概ね成長しきっていると考えられるので、低温ではほぼ一定値を取ると仮定する。Gelsil 中超流動密度 ρ_s は巨視的な Gelsil 試料にわたってどれだけの局在 BEC が超流動に参加するかで決まる。全ての局在 BEC が超流動に参加するとき、 $\rho_s = \rho_L$ となる。高圧ほど ρ_s は抑制され、臨界圧力において $\rho_s = 0$ となるので、絶対零度において必ずしも全ての局在 BEC が超流動に参加するわけではなく、最低圧でも $\rho_s(0) \neq \rho_L$ であると考えられる。臨界圧力においても局在 BEC は存在していると考えられるので、 $\rho_L \neq 0$ であり、 ρ_s はこれらの局在 BEC が繋がった数で決まると考えている。

位相コヒーレンスの獲得は粒子の位置交換によって達成されるので、この位相整合にかかる特徴的な時間スケール τ は、Gelsil 中の超流動の質量流で決まる。局在 BEC の凝縮体密度は ρ_L であるとしているが、局在 BEC 間を分断している細孔のくびれは超流動転移する前は凝縮体が存在せず、そのため質量流は存在しない。この局在 BEC 間の凝縮体密度 (局在 BEC 間でやり取りされる凝縮体の実効的な密度) は平均的に ρ_s と同様に低温に向かって成長し、完全な超流動となると ρ_L に一致すると考えられる。すなわち質量流密度は $\rho_L v_s (\rho_s(T)/\rho_s(0))$ と書いて、この質量流によって新しい局在 BEC 運び込まれる質量が ρ_L と同程度になった時に位相の相関が成立すると考えると、位相整合の時間スケール τ は

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\rho_L} \frac{\rho_L}{\rho_s(0)} \rho_s(T) \frac{v_s}{l} = \frac{\rho_s(T)}{\rho_s(0)} \frac{v_s}{l} \quad (6.9)$$

と書ける。ここで l は局在 BEC 間の距離であり、局在 BEC のサイズと同程度である。

局在 BEC が超流動に一度参加すると位相コヒーレンスが確立してその位相は巨視的な超流動と揃い続けると考えると、散逸が共鳴測定で検出されるという事実と反してしまう。共鳴実験で得られる散逸は 1 周期あたりに散逸するエネルギーに対応しているが、この考えでは散逸するエネルギーは測定に時間をかけるとなくなってしまうことになる。すなわちある温度において超流動に参加する局在 BEC は、その温度では位相が量子揺らぎと熱揺らぎによって再び位相コヒーレンスを失って揺らいでしまい、共振器によって外的に与えられるエネルギーの助けを得て、位相の不整合を解消して超流動に参加する、という過程を繰り返していると考えられることになる。

ある温度 T において巨視的な超流動に参加している局在 BEC の数 $N(T)$ は超流動密度 ρ_s に比例すると考えられるので、温度を下げていった時にある温度 T において新たに超流動に加わる局在 BEC の数は $N(T)$ の温度微分から得られることになる。全ての局在 BEC が超流動に参加しているとしたとき $\rho_s = \rho_L$ となるので、超流動に参加し

ている局在 BEC の数 $N(T)$ は

$$N(T) = \frac{N_0}{\rho_L} \rho_s(T) \quad (6.10)$$

と書ける。ここで N_0 は全局在 BEC の数である。従って、温度 $T \sim T + \Delta T$ において新たに巨視的な超流動に参加する局在 BEC の数 $\Delta N(T)$ は

$$\Delta N(T) = \frac{N_0}{\rho_L} \left(\frac{\partial}{\partial T} \rho_s(T) \right) \Delta T \quad (6.11)$$

と書ける。ここで温度幅 ΔT は十分小さいとした。ある温度 T に着目したとき、その温度 T より高温において既に巨視的な超流動に参加している局在 BEC の位相は、巨視的な超流動体との間にコヒーレンスが確立しているため位相の不整合は生じず、散逸には寄与しない。しかしその温度 T より僅かでも高温であれば散逸に寄与しないという訳ではなく、ある一定の温度幅 ΔT の範囲に入っているものは位相の不整合を生じ、散逸に寄与すると考える。この特徴的な温度スケール ΔT は、局在 BEC の位相を再び揺らがせるようなエネルギースケールに対応する温度であると考えられる。このエネルギーは前述の位相整合に要するエネルギーと同等であり、

$$\Delta T = \frac{\Delta\mu}{k_B} = \frac{\hbar\Delta\phi}{k_B} \frac{\rho_s(T)}{\rho_s(0)} \frac{v_s}{l} \quad (6.12)$$

である (k_B は Boltzmann 定数)。

この位相整合に係るエネルギーの議論は位相スリップの観点からも説明することができる。位相スリップによるエネルギー損失は、位相スリップによる運動エネルギーの減少量である。上述の議論と同様に、孔中で質量流によって運ばれる質量密度は $\rho_L \rho_s(T) / \rho_s(0)$ と考えられるので、

$$\frac{1}{2} \frac{\rho_L}{\rho_s(0)} \rho_s(T) (v_s + v_{ps})^2 - \frac{1}{2} \frac{\rho_L}{\rho_s(0)} \rho_s(T) v_s^2 = \frac{\rho_L}{\rho_s(0)} \rho_s(T) v_s v_{ps} + \frac{\rho_L}{\rho_s(0)} \rho_s(T) v_{ps}^2 \quad (6.13)$$

と書ける。 v_{ps} は位相スリップによる超流動速度の変化量である。右辺第 2 項は v_{ps} のみの項であり、位相の不整合が自発的に生じていることによるエネルギーの不安定性を表している。共鳴の散逸として効くのは右辺第 1 項の v_s と結合した項で、共振器から与えられる外的なエネルギーによって位相スリップが励起されると考えると、その分のエネルギーが散逸として共振器から奪われることになる。位相スリップによる超流動速度の変化量は、スリップした位相差 $\Delta\phi$ を用いて

$$v_{ps} = \frac{\hbar}{m_4} \frac{\Delta\phi}{l} \quad (6.14)$$

と書ける。 l は位相勾配の長さであり、今の場合では局在 BEC 間の距離に相当する。このエネルギー密度を局在 BEC で積分すると

$$\int \rho_s v_s v_{ps} d\mathbf{r} = \frac{\rho_L \mathcal{V}}{m_4} \frac{\hbar\Delta\phi}{l} \frac{\rho_s(T)}{\rho_s(0)} v_s = \tilde{n} \frac{\hbar\Delta\phi}{\tau} \quad (6.15)$$

となり、式 (6.8) と同じ形になる。但し $\Delta\phi$ は平均値とし、 v_s は局在 BEC 内で一定と仮定している。また最後の積分は流路ではなく局在 BEC に対して行っているが、本質的には位相が変化する長さスケールであるコヒーレンス長 ξ に亘る積分を取れば良い。位相の不整合を解消するために要するエネルギーは局在 BEC の位相を捻じ曲げるのに必要なエネルギーであると共に、自発的な位相差を解消するために位相スリップを生じさせるのに必要なエネルギーと解釈することもできる。

以上の議論をまとめると、Gelsil 中超流動転移に伴う散逸エネルギー ΔE は

$$\begin{aligned}\Delta E &= \bar{n}\Delta\mu\Delta N(T) \\ &= \frac{\mathcal{V}}{m_4} \left(\frac{\hbar\Delta\phi}{l} \right) \frac{\rho_L}{\rho_s(0)} \rho_s(T) v_s \frac{N_0}{\rho_L} \left(\frac{\partial}{\partial T} \rho_s(T) \right) \frac{1}{k_B} \left(\frac{\hbar\Delta\phi}{l} \right) \frac{\rho_s(T)}{\rho_s(0)} v_s \\ &= \frac{\mathcal{V}}{m_4 k_B} \left(\frac{\hbar\Delta\phi}{l} \right)^2 \frac{N_0}{\rho_s^2(0)} \left(\frac{\partial}{\partial T} \rho_s(T) \right) \rho_s^2(T) v_s^2\end{aligned}\quad (6.16)$$

と書ける。

式 (6.16) に含まれる各物理量は以下のように見積もる。 \mathcal{V} は局在 BEC の平均体積であり、Gelsil の平均孔径 3 nm の球と仮定して $14.1 \times 10^{-27} \text{ m}^3$ と求めた。 l は局在 BEC 間の平均の距離であり、局在 BEC のサイズと同程度である。局在 BEC の総数 N_0 は局在 BEC の体積の総和 $N_0 \mathcal{V}$ と Gelsil の体積 ($\phi 9.0$ 、厚み 2.0 mm) の比が空孔率 50% であるとして 2.2×10^{18} と見積もれた。局在 BEC の位相は超流動に参加する直前には定まっておらず、その期待値は任意の値を取り得る。位相は 2π の整数倍の自由度があるため位相差が取り得る値は $0 < \Delta\phi < 2\pi$ であり、位相整合の際に正負どちらの方向に位相が回っても良くエネルギー変化を最小に抑えるように位相変化が少なくて済む方向を選ぶため、位相差は最大で π となる。局在 BEC 毎に位相は任意の値を等確率で取るとすると、平均値として $\Delta\phi = \pi/2$ となる。超流動密度 ρ_s の値は最低次モードの共鳴周波数

$$f_1(T) = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{\rho_s}{\rho^2} \beta \frac{8\pi(1/\sigma_1 + 1/\sigma_2)^{-1}}{A_d^2}}\quad (6.17)$$

から見積もった。構造に依存する定数 β は、 N 本の平行な、断面積 a 長さ L の直管流路の場合 $\beta = Na/L$ となる。Gelsil の細孔をこのような平行直管流路に近似して定数 β を見積もり、またダイアフラムの張力 $\sigma_{1,2}$ は直流バイアス電圧を印加した際の電極との間の静電容量を測定することで実験的に測定することができる。これらの値を用いて共鳴周波数の概算値を実験と比較すると、Gelsil 中の超流動密度 ρ_s は絶対零度の値としてバルク液体ヘリウムの密度 ρ の 1/10 程度になっていると見積もれた。この値は流路の断面積に亘る超流動密度であり、細孔表面の 2 原子層程度 ($\sim 0.6 \text{ nm}$) の不活性層 (inert layer) を含んでいる。ここでの議論では超流動密度 ρ_s は同様に不活性層を含

んだ定義であるので、この 1/10 という見積もりを使用して散逸の評価を行う。また共鳴周波数の見積もりにおいて Gelsil 流路を直管に近似しているが、Gelsil 流路の捻じれや分岐と合流のような複雑さによる補正を正確に取り入れることができない。共鳴周波数 f_1 は純粹に多孔体中の流量で決まるため、Gelsil 流路の複雑さによる補正は実効的に長さ L が少し変化する程度であると考えられる。

図 6.4 に Gelsil 中超流動転移に伴う散逸異常の温度依存性を示す。図 6.4(a) は 0.1 MPa における異なるドライブ電圧 $1 V_{pp}$ と $10 V_{pp}$ のデータであり、 $1 V_{pp}$ の散逸エネルギーは 100 倍して表示している。図 6.4(b) は異なる圧力における散逸異常を示しており、ドライブ電圧は $V_{ac} = 10 V_{pp}$ である。図中の曲線は式 (6.16) の計算曲線である。

図 6.4(a) に示す通り、計算曲線は双方のデータと良く一致している。この評価にはフィッティングパラメーターを一切含まない。特に $10 V_{pp}$ に対しては全温度域でその振舞いを良く説明している。式 (6.16) によればドライブ依存性は超流動速度 v_s として現れるが、ドライブ電圧 V_{ac} と v_s は比例すると考えられるため、散逸エネルギー $\Delta E \propto v_s^2$ はドライブ電圧 10 倍で 100 倍になると期待される。 $1 V_{pp}$ のデータは散逸を 100 倍した値で $10 V_{pp}$ の場合と同程度の散逸エネルギーとなっており、式 (6.16) のドライブ依存性と符合する。また散逸の温度依存性は $T = 0.8T_c$ 付近で急激に減少して $10 V_{pp}$ のデータと異なっているが、その領域を除いて概ね一致する結果が得られている。この不一致がデータの乱れによるものか本質的なものかは明らかでない。

一方で図 6.4(b) に示す通り、高圧では計算曲線から散逸の振舞いが逸脱する様子が見られた。1.0 MPa では T_c 近傍の高温では概ね一致しているが、 $T = 0.8T_c$ 付近からは低温に向かって曲線が減少する一方でデータは上昇し続けて逸脱している。2.0 MPa のデータでは計算曲線と温度依存性は合っているものの、全体的に大きさが 4 倍程度異なっている。この不一致の原因として、 T_c 以下の温度においても第二音波との結合の影響を受けている可能性がある。有限要素法解析を用いて共振器内で励起される第二音波の定在波モードを調べたところ、0.1 MPa では T_c 近傍で結合するモードが存在しない一方、1.0 MPa と 2.0 MPa では T_c の低温側の近傍において結合するモードが存在することが判明した (補遺 B)。これらのデータ間の違いは R_2 モードの周波数が異なることと、第二音波の音速が圧力依存することによる。1.0 MPa では $T = 0.9T_c$ より低温で散逸のデータは徐々に逸脱しており、2.0 MPa ではほとんど T_c 直下から散逸データが計算曲線に対して増加している。この違いは R_2 モードと第二音波の定在波が交差する温度が圧力によって異なっていることと定性的に符合する。詳細は補遺 B で議論する。

散逸異常の評価にあたって、バルク液体の粘性散逸と Gelsil 中を超流動質量流が流れることによる散逸の減少分を差し引く操作を行っており、この評価にはある程度不確実性を含んでいるが、それを考慮しても散逸異常の大きさに大きな変化はない。高

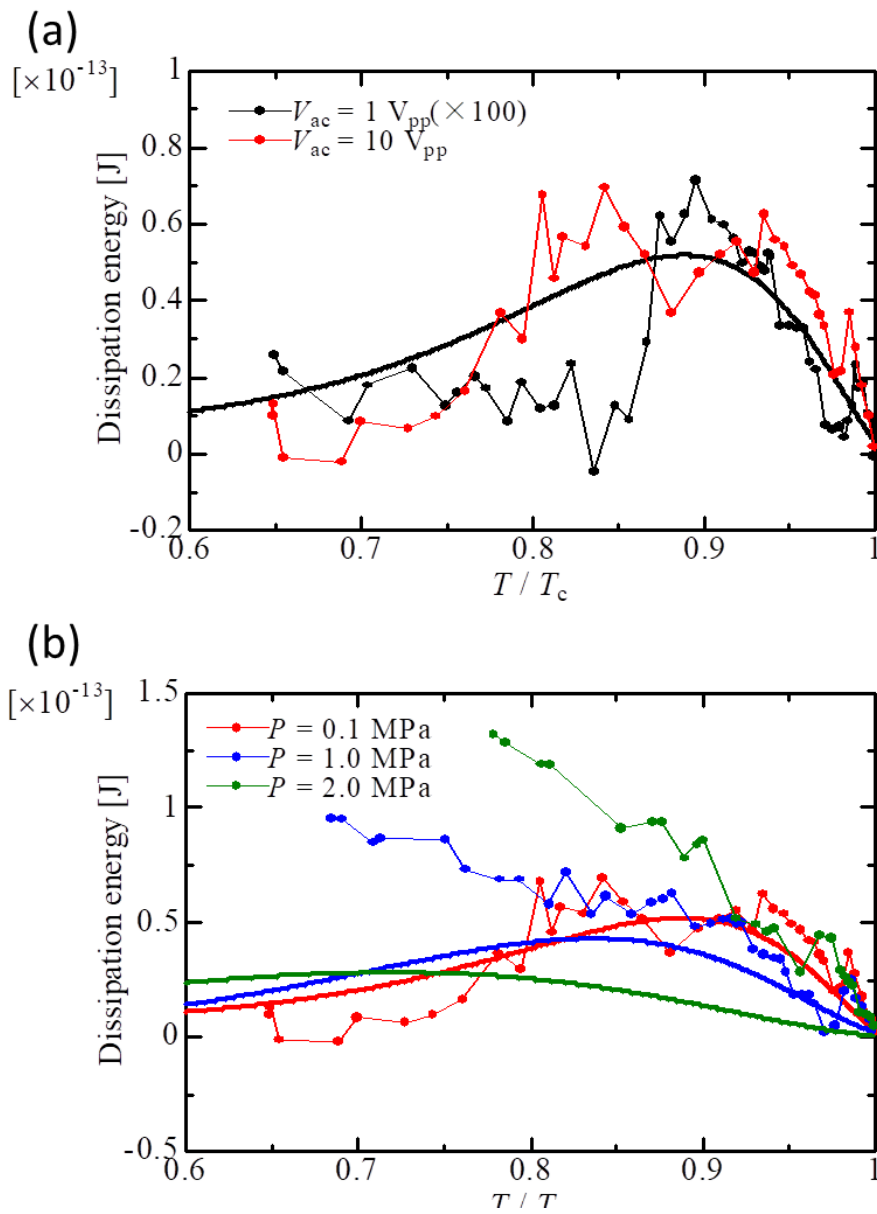


図 6.4. Gelsil 中超流動転移に伴う散逸異常温度依存性。(a) 0.1 MPa における散逸のドライブ電圧依存性。(b) 散逸の圧力依存性。

圧における大きな散逸異常は図 6.1 からも明らかで、0.1 MPa においては散逸が全体として減少する中で小さなピークを含んでいるように見えるが、1.0 MPa では T_c 以上の散逸を延長した振舞いをしており、2.0 MPa では T_c で急激に増加したのち横這いになっている様子が見られる。

図 6.1 からも分かるように、 T_c 以下の温度では散逸がばらつきを持つようになる。この要因の一つとして、低温で散逸が減少すると Q 値が向上して共鳴が鋭くなり、評価が難しくなるという点が挙げられるが、特に 2.0 MPa では T_c 以下の散逸は T_c にお

けるものより大きくなっているため説明がつかない。また T_c 近傍では共鳴周波数が大きく変化しており、本研究では周波数掃引をゆっくり昇温している過程で測定しているため、測定時間内にわずかに共鳴が変化している可能性が考えられるが、共鳴周波数は安定して見積もれていること、最低温付近で共鳴周波数の変化が小さくなくても散逸はばらつきを持つことから、この散逸のばらつきは T_c 以下の現象を何らかの形で反映していると考えられる。本節で議論してきた超流動転移の機構によれば、ある温度において局在 BEC が超流動に参加した後再び位相が揺らいで、超流動との間の位相のコヒーレンスが失われることになるが、これらの現象にある程度確率的な要素を含み、そのために散逸にばらつきが生じている可能性がある。しかしながら、周波数掃引測定には共鳴点近傍だけでも 1 分程度の時間がかかっているため、この現象の特徴的な緩和時間がもし十分短ければ、この確率的な現象は平均化されて測定にかからないと考えられる。また局在 BEC は Gelsil 試料内に 10^{18} 個程度存在すると見積もれており、それぞれの確率的な要素は巨視的にはやはり平均化されて観測されることが考えられる。そのためこの散逸の不安定性の由来は不明であるが、超流動転移における超流動の流れの不安定性は興味深い研究対象である。

超流動転移に伴って観測された散逸異常は、高圧では散逸のデータは計算曲線と逸脱する傾向が見られるが、共振器内で励起した第二音波の定在波とダイアフラムの振動が結合による散逸として定性的に説明できた。しかしながら第二音波との結合による散逸の増加量は見積もれておらず、高圧のデータに対して定量的な議論は困難である。一方で 0.1 MPa ではフィッティングパラメータを含まずに計算値と良く一致することが示しており、ドライブ電圧依存性も良く説明できている。本章で議論した超流動転移に伴う散逸異常は Gelsil 中ヘリウム 4 に特有のものであり、Gelsil 中超流動転移が散逸を伴う機構によって駆動されることを示している。この散逸の機構は本章での議論の通り、局在 BEC 間の位相コヒーレンスを確立するために量子揺らぎによる位相の不整合を解消するためのエネルギーとして説明することが出来た。この議論は最近接の局在 BEC 間の位相の相関が連鎖的に成長することで巨視的な超流動が現れるという第 5 章で提案した超流動転移の機構に基づいたものであり、相関長が巨視的なスケールに発散することなく超流動転移が生じることを説明している。

第 7 章 結論

本研究では有限温度の超流動転移温度 T_c における量子相転移の効果と局在 BEC の微視的な振舞いという 2 つの視点から、ナノ多孔体 Gelsil ガラス中ヘリウム 4 の超流動転移の機構を明らかにするため、Gelsil 中を流れる超流動質量流を伴う流体力学的な共鳴実験を行った。共鳴周波数からは超流動密度 $\rho_s(T)$ の温度依存性が得られ、そこから T_c 近傍における ρ_s の臨界指数を求めることができた。Helmholtz 共鳴実験ではバルクヘリウム 4 の固化圧力 2.5 MPa 以下でのみ測定可能であったが、実験を行った全圧力において超流動臨界指数は $\zeta = 1.0 \pm 0.1$ という値を取ることが分かった。このことから測定を行った全圧力において、有限温度の転移点で Gelsil 中超流動ヘリウム 4 は 4 次元 XY に属することが明らかとなった。散逸の温度依存性からは T_c 直下の温度において Gelsil 中超流動転移に特有の散逸異常を観測し、局在 BEC 間の位相の不整合が解消されるプロセスとして説明することができた。この結果は局在 BEC の微視的な振舞いを明らかにし、Gelsil 中ヘリウム 4 の超流動転移の機構を明瞭に説明するものである。

通常の量子相転移系では、有限温度の相転移点近傍では熱揺らぎの効果が支配的となるため、相転移は古典的な臨界挙動に従う。本研究で得られた Gelsil 中ヘリウム 4 の超流動臨界指数は $\zeta = 1$ であり、今回実験を行った全圧力域において有限温度の T_c においても 4 次元 XY の量子臨界性を示している。このことはヘリウム 4 が Gelsil 細孔中に閉じ込められることで受ける量子効果が極めて強いことを示すと共に、超流動転移の機構が微視的なスケールで生じていることを表している。このことから局在 BEC 状態から超流動への転移は相関長が巨視的なスケールに発散せず、Gelsil 細孔の有限サイズ効果によって抑制された相関が最近接の局在 BEC 間で繋がって、位相コヒーレンスが巨視的なスケールに増幅されることで実現していると解釈した。このとき量子揺らぎのスケールを実空間の長さを書き直すと Gelsil の平均細孔径程度、すなわち局在 BEC 間の距離程度であることが分かり、この解釈においては量子効果が有限温度の T_c においても熱揺らぎと同等の寄与を与えることができる。

局在 BEC の描像は散逸異常の解析によって確かめられた。超流動転移温度 T_c 以上の温度、局在 BEC 状態では位相の相関が存在しないため、それぞれの局在 BEC は量子揺らぎにより位相が確定していない。 T_c から低温で成長する巨視的な超流動では位相コヒーレンスが確立しており、そこに新たに加わる局在 BEC と超流動の間には位相が一般に異なっている。その位相の不整合を解消することで局在 BEC と超流動の間に位相コヒーレンスが成立して超流動に参加する。この描像は位相整合にかかるエネルギーを Helmholtz 共振器による振動流と結合したエネルギー散逸として評価することで確かめられた。特に最低圧力の 0.1 MPa ではモデルによる計算曲線は実験結果と

良く一致し、ドライブ電圧依存性とも符合する結果が得られた。一方で圧力上昇に伴い、散逸エネルギーが計算曲線と比べて大きくなる傾向が見られているが、これは有限要素法解析の結果から第二音波定在波との結合による余剰の散逸の寄与であると考えられる。一方で 0.1 MPa における散逸の解析には第二音波の影響はなく、局在 BEC の位相整合によるエネルギー散逸機構として説明することができた。

以上のように、局在 BEC 状態の微視的な様子とそこから超流動相へ相転移する過程が明らかとなった。局在 BEC が Gelsil 中で孤立して存在することで量子揺らぎを顕著に受け、バルクや Vycor 等の多孔体中では見られない強い超流動抑制を示し、量子相転移を示すようになる。この超流動転移は有限温度においても T_c で量子臨界性を示すという特異な性質を持つ。これは Gelsil 中ヘリウム 4 が局在 BEC 状態、すなわち量子揺らぎを受けてコヒーレンスを失った秩序状態が孤立して多数並んでいるという特殊な状態を持つことに起因する。Gelsil 中ヘリウム 4 は量子相転移の研究において理想的な舞台であるとともに、有限温度における量子臨界性を示すという特異な性質を持つ系である。このような理想性と特異性は制限空間中の物性研究の大きな目的であり、今後様々な多孔体中に閉じ込めたヘリウム 4 の超流動研究が量子相転移の一般的な理解に貢献することが期待される。

展望

本研究において Gelsil 中ヘリウム 4 の量子相転移の性質と局在 BEC 状態に関する実験的証拠が得られ、超流動転移の微視的な機構が明らかとなった。一方で相図の詳細をはじめとする Gelsil 中ヘリウム 4 の超流動物性について実験毎に差異が生じる理由や、多孔体試料の詳細がヘリウム 4 に及ぼす影響については依然として明らかでない点が多い。本実験では異なる Gelsil 試料を用いて測定を行っているが、これらは窒素吸脱着測定の結果では細孔分布に有意な差は見られなかった。これらの試料に対して Helmholtz 共鳴実験からは超流動転移温度 T_c における超流動密度 ρ_s の立ち上がりは異なっているものの、 T_c 自体は一致するという結果が得られた。一方で Yamamoto らの捻じれ振動子の実験の結果とは相境界線の臨界性は同じであるが、 T_c と臨界圧力 P_c が大きく異なっていた。過去に同一バッチの Gelsil 試料を用いた捻じれ振動子と超音波測定によって同様の差異が観測されており、多孔体の詳細、あるいは測定方法がそれらと影響し合っ超流動物性に变化をもたらしていると考えられる。本研究で用いた Helmholtz 共振器は多数の高次モードをもつため、超流動転移の周波数依存性を調べられる可能性があり、実際に試料 B において R_3 の共鳴を用いた測定では T_c に有意な差は見られなかったものの ρ_s の温度依存性には僅かに違いが見られている。但し高次のモードは共鳴周波数の ρ_s 依存性が自明でないため、正確な評価には各モードの更なる理解が必要となる。

また本研究において試料によって超流動転移温度 T_c 近傍の超流動密度 ρ_s の成長の仕方に違いが見られている。試料 A では急峻に ρ_s が成長している一方で、試料 B では ρ_s の成長が T_c の近傍のみ鈍った振舞いをしていた。窒素吸脱着測定から得た細孔分布には試料による違いがほとんど見られておらず、僅かに異なっているのもピーク細孔径より小孔径側の分布であった。小孔径側の分布は多孔体中ヘリウム 4 の超流動物性に影響する場合 T_c を下げる方向に作用すると考えられるので、 T_c 近傍の ρ_s の鈍りを生じる原因になっているとは考え難い。この ρ_s の振舞いを説明する一つの仮説として、試料の巨視的なサイズ依存性を考えた。試料 A と試料 B は共に $\phi 9.1$ の円板であり、厚みがそれぞれ 1.0 mm、2.1 mm と試料 B の方が大きい。局在 BEC の考えに基づいて、超流動性は局在 BEC 間の相関が繋がることで現れているとすると、この相関の成立はそれぞれの局在 BEC 間の距離と相関長で確率的に決まっていると考えられる。 T_c はこの相関の接続による位相コヒーレンスが巨視的なサイズで実現し始める温度であり、 ρ_s は位相コヒーレンスを組んだ局在 BEC の数に対応する。Helmholtz 共鳴では、この円板型の Gelsil 試料のうち、片端から多端まで超流動性 (コヒーレンス) が成立した時に ρ_s が観測にかかり始める。細孔分布は 2 つの試料で同じであるので、位相コヒーレンスが巨視的なスケールで成立する温度 T_c は変わらないが、その後のコヒーレンスの成長も同様に確率的に進むとすると、試料 B では試料の両端の距離が長いから、 ρ_s の成長が遅くなると考えられる。物理的機構は異なるが、同様の試料サイズ依存性は Vycor 中薄膜ヘリウム 4 の超流動転移 [67] や 1 次元 Josephson 接合列における超伝導-絶縁体転移 [68, 69] においても観測されている。この考えは現時点では定量性がなく、更なる試料サイズ依存性を実験的に調べる必要があるが、それによって局在 BEC の相関長の成長に対する情報が得られることも期待される。

本研究ではいくつか興味深い課題が残されている。5.5 節で議論している通り、相関長が相転移点 T_c で発散すると、 T_c の近傍では 4 次元 XY から 3 次元 XY の普遍性クラスへのクロスオーバーが生じると期待されるが、本研究では少なくとも換算温度 $t (= 1 - T/T_c) = 0.01$ まで、試料 A の低圧のデータでは $t = 0.001$ まで 4 次元 XY 臨界性が見られている。この 3 次元-4 次元クロスオーバーを議論するためには、更に T_c の近傍まで詳細に臨界現象を調べる必要がある。

また本研究では Helmholtz 共振器の特性上、バルク液体ヘリウム 4 の固化圧力以上の圧力では測定を行えなかった。系の不均一効果による異なる普遍性クラスへのクロスオーバーなど、Gelsil 中ヘリウム 4 の量子相転移の更なる理解には、更に高圧の臨界圧力付近の測定が必要になる。過去に固体ヘリウム 4 において、ピエゾ素子を用いた共鳴測定が行われており [70]、これらの技術を応用して Gelsil 中の流れの共鳴実験を行える可能性がある。またダイアフラムを対向電極で駆動する実験も行われており [71]、これは液体ヘリウム 4 において我々でも既に確立した技術である (補遺 F)。こ

これらの技術を用いて Gelsil 中ヘリウム 4 の量子臨界点近傍の物性を調べることで、量子相転移の更なる理解が期待される。

補遺 A 無冷媒ヘリウム 3 冷凍機

Helmholtz 共鳴実験には無冷媒ヘリウム 3 冷凍機を使用した。この冷凍機はパルスチューブ冷凍と液体ヘリウム 3 の減圧冷却を組み合わせた冷凍機である。液体ヘリウム 3 の減圧冷却はワンショットであり、無負荷では最低温 300 mK が安定して持続するが、実験において冷凍機に熱負荷が加わると最低温まで到達せず、また低温を維持できる時間が極端に短くなる。温調を用いて液体ヘリウム 4 の実験を行うにあたって冷凍機を部分的に改造したため、本章で紹介する。

A.1 無冷媒ヘリウム 3 冷凍機の構成と運転

無冷媒ヘリウム 3 冷凍機は 2 段パルスチューブ冷凍機、CRYOMECH 社 MODEL PT407 Cryogenic Refrigerator を基礎にしている。無冷媒冷凍機では低温部において気体ヘリウム 4 の圧縮と膨張を繰り返すことにより持続的に低温を実現する。Gifford-McMahon(GM) 冷凍法では低温部でシリンダー内をピストンが往復運動し、それに合わせてコンプレッサーの高圧弁と低圧弁を切り替えることで寒冷を得る。パルスチューブ冷凍では GM 冷凍機のピストンにあたる機構は充填された気体ヘリウム 4 が行っており、機械的に運動する機構が低温部 (コールドヘッド) に存在しないため低振動を実現できる。パルスチューブ冷凍においては低温部と高温部のガスピストンの伸縮のタイミングを制御するためのバルブユニットが存在するが、これをコールドヘッドから切り離したりリモートバルブとすることで振動を更に低減できる。これらの冷凍機では電気を使用して寒剤を用いずに低温が得られる。

本研究で使用した無冷媒冷凍機はリモートバルブを持つ 2 段パルスチューブ冷凍機であり、第一ステージは 30 K、第二ステージでは無負荷で 2.8 K 程度の低温が実現できる。これに更にヘリウム 3 冷凍機の機能を持つ。冷凍機の最低温度部分は第二ステージとは別に設けられているヘリウム 3 ポットステージである。このヘリウム 3 ポットで液化されたヘリウム 3 を減圧冷却することで最低温 300 mK(無負荷) が実現される。

冷凍機の概略図を図 A.1 に示す。気体ヘリウム 3 は冷凍機上部の容器に格納されており、冷凍機外の電磁バルブ (Solenoid Valve) を電氣的に開閉することで低温部に導入することができる。各ステージ間は断熱されており、パルスチューブ冷凍機を稼働すると低温部の圧力が減少して室温部からヘリウム 3 が導入される。この気体ヘリウム 3 が熱交換ガスとしてヘリウム 3 ポットを第二ステージ温度 (~ 3 K) まで冷却する。ヘリウム 3 ポットが十分冷えるとヘリウム 3 は液化されてヘリウム 3 ポットに液体として溜まり始める。ヒートスイッチを動作することで吸着ポンプ (Sorption Pump) がヘリウム 3 を吸着して減圧を行い、ヘリウム 3 ポットを最低温 (~ 300 mK) に冷却す

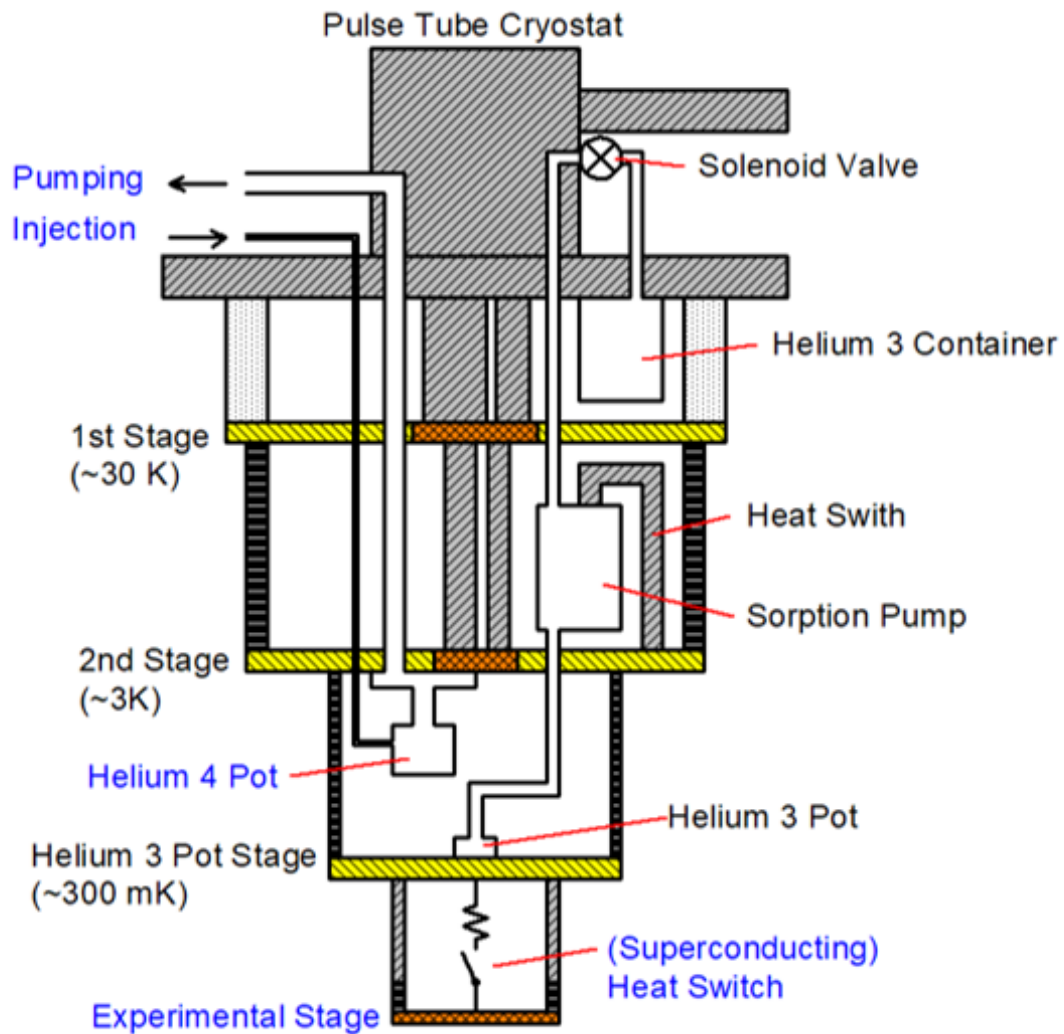


図 A.1. 無冷媒ヘリウム 3 冷凍機の概略図。青字で示す部品は増設したもの。超伝導ヒートスイッチは熱流に対する回路図で示している。

る。このヒートスイッチは熱交換ガスを用いており、ヒーターの ON/OFF により熱交換ガスの脱離/吸着を操作して熱交換を制御する。この最低温はヘリウム 3 ポットの液体が枯渇するまで持続し、液体ヘリウム 3 が枯れると 2 K 程度まで急速に昇温する。吸着ポンプをヒーターで昇温することで吸着されたヘリウム 3 は追い出され、再びヘリウム 3 ポットに液化される。これを繰り返しながら実験を行う。図には示していないが、実際には第二ステージと第一ステージの輻射シールドと、真空断熱缶を取り付けて運用する。

冷凍機の基本的な運転は以下のように行う。真空断熱缶をターボ分子ポンプで真空引きしておき、パルスチューブ冷凍機のコンプレッサーの水冷のためチラーを起動し

て冷却水を 18.0 °C に維持する。パルスチューブ冷凍機の運転を開始すると同時に電磁バルブを開け、ヒートスイッチのヒーターを 30 K に設定しておく。これにより吸着ポンプを第二ステージと熱的に接続して冷却し、ヘリウム 3 をすべて低温部に導入する。第二ステージが 10 K 程度まで冷えたら電磁バルブを閉じてヘリウム 3 が戻らないようにし、ヒートスイッチのヒーターを切って吸着ポンプのヒーターを 50 K に設定する。これにより低温部でヘリウム 3 が熱交換ガスとして広がり、ヘリウム 3 ポットを冷却する。ヒーターの切り替えにより冷凍機全体の温度が一度昇温するが、第二ステージとヘリウム 3 ポットはほぼ同時に 3 K 程度まで冷え、ヘリウム 3 はポットに液化される。十分時間が経った後、吸着ポンプのヒーターを切ってヒートスイッチのヒーターを 30 K に設定すると、ヘリウム 3 の減圧冷却が開始する。無負荷では減圧開始から 1 時間程度で最低温に冷却され、300 mK 以下を 120 時間維持する。ヘリウム 3 が枯れた後は再びヒートスイッチを切って吸着ポンプを 50 K に昇温する。液体ヘリウムの実験を行っている場合には注意が必要で、このときに実験セルの温度が急激に上昇し、7 K 程度まで昇温する可能性がある。これでは実験セルを破壊しかねない圧力になるため、吸着ポンプのヒーターを 30 K→40 K→50 K といった具合に段階的に昇温し、各段階において温度が落ち着くまで待つ必要がある。

上述の冷凍機の挙動は無負荷の場合であり、実際の実験に際してはヘリウム 3 ポットに熱負荷がかかり、最低温は 300 mK まで到達せず、維持される時間も減少する。特に液体ヘリウム 4 の実験の際には第二ステージ (~3 K) から最低温の間で超流動転移し、実験セルへのヘリウム導入ライン中に超流動ヘリウムの二流体性に起因する大きな熱流入を生じる (超熱輸送)。これは超流動転移温度より少し低温、飽和蒸気圧下で 1.9 K 程度にピークを持つ。これはヘリウム 3 の小さな冷却能に対してかなり大きな熱負荷になる。また温度調整をかけて測定を行うことができない。

そこで図 A.1 に示すように超伝導ヒートスイッチで接続した実験ステージを設けた。超伝導体は転移温度以下では熱伝導度が急速に小さくなるため、外部磁場によって超伝導と常伝導を切り替えることで熱伝導を制御することができる。この性質を利用したのが超伝導ヒートスイッチであり、これによって実験ステージは冷却時にはヘリウム 3 ポットと熱接触をとり、温度調整をかける際には熱接触を切ることでヘリウム 3 ポットへの熱負荷を低減する。これによって実験装置の到達温度は高くなるものの、1 K 程度の中温度域で比較的安定して実験することができる。また Gelsil を用いた Helmholtz 共鳴実験では使用していないが、実験セルのヘリウム導入ラインを伝う熱流入を軽減するために Vycor ガラスを用いたスーパーリーク (超流動成分のみが透過する流路) を設け、スーパーリークを介して実験セルに液体ヘリウム 4 を導入するためにスーパーリークの手前の液体ヘリウムを予冷するためのヘリウム 4 ポットを設けている。

A.2 製作した各機構の特徴と機能

超伝導ヒートスイッチと実験ステージ

超伝導転移に伴う急激な熱伝導度の減少を利用したものが超伝導ヒートスイッチであり、これを実現するためには熱伝導をスイッチングする超伝導金属と、そこに磁場を掛けるためのコイルが必要である。超伝導体の熱伝導度は実際には超伝導転移温度の1/10程度まではある程度残っている。ヘリウム3冷凍機の場合1~2 K程度の温度域において熱接触を軽減したいので、超伝導転移温度が10 K程度である金属を使用する必要がある。ただし第二種超伝導体には磁束量子が侵入した混合状態が存在し、超伝導を破壊する上部臨界磁場は一般に高いため熱伝導のスイッチングに高磁場を用意する必要があるが、これは技術的に容易ではない。本研究では第1種超伝導体の中で転移温度が高く利用しやすい鉛の薄板を利用した。鉛板の表面を紙やすりで磨いて酸化被膜を除去し、銅の柱にネジで締め付けて固定して銀ペースト(銀粉を混ぜた接着剤)で固定している。鉛板は1~2 K程度でもある程度の熱伝導度を持っているため、捻じ曲げて少し距離を長く取っている。

超伝導ヒートスイッチの概略図を図 A.2 に示す。鉛の臨界磁場を超える磁場を制御するため、NbTi 超伝導線を用いた超伝導ソレノイドコイルを作成した。鉛板はコイルの軸方向の中央付近に位置するように設計している。超伝導コイルの外周部には、コイルからの漏洩磁場が周辺の実験系に影響を与えないよう超伝導シールドを設けている(図 A.3)。超伝導体には内部に磁場が侵入しないように完全反磁性を示すため、コイルの磁場の漏洩を軽減できる。この超伝導シールドはコイルが生む磁場も減少させ

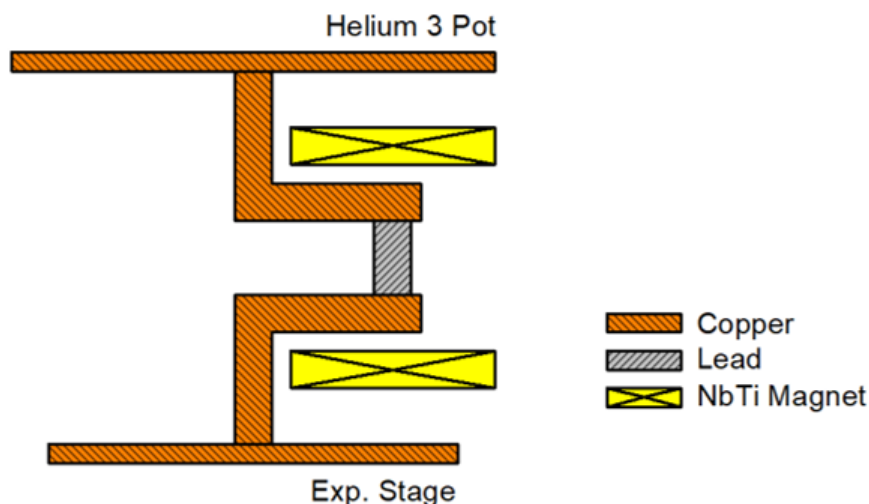


図 A.2. 超伝導ヒートスイッチの概略図。

るため、その効果も取り入れた磁場を計算してコイルの設計を行った。

超伝導コイルは銅で作成したボビンに NbTi 線を巻き付けて作成する。銅のボビンには機械工作の際に微小なばりが生じている可能性があり、そこで線材が損傷する可能性があるため、表面にカプトンテープを巻いて保護をしている。NbTi 線を隙間なく巻き付けて 2 周巻く毎に薄めたワニスを染ませて固定し、6 周巻く毎にカプトンシートを巻いてワニスで固定する。これにより均一に線を巻きやすくなる。

超伝導コイルの NbTi 線は冷凍機の第二ステージにおいて高温部に繋がる銅線に接続している。接続部で生じる熱が NbTi の超伝導を破壊してしまう可能性があるため、発熱を最小限にするために NbTi 線と銅線を超音波はんだで接続した。また電流の変化などによるクエンチ (急激な超伝導破壊) が生じた場合に超伝導コイルを保護するためのシャント抵抗として $5\ \Omega$ 程度のマンガニン線を並列に接続している。これにより NbTi の超伝導が破壊された場合に急激な抵抗の発生による NbTi 線の劣化を防ぎ、コイルのインダクタンスとシャント抵抗で決まる時定数で電流を減衰させることができる。接続部はカプトンテープで絶縁保護を取った上で第二ステージに固定した銅板にワニスで固定して熱接触を取り、また NbTi 線も改めて熱アンカーを取っている。第二ステージからヘリウム 3 ポットまでは熱伝導を抑えるために超伝導線の銅クラッドを硝酸で溶かして、絶縁と機械的保護のためにカプトンチューブに通して冷凍機に縛り付けている。

実験に際しては以下のように運用する。ヘリウム 3 ポットの減圧冷却によりポットの温度が冷えるのに従って実験ステージの温度も減少する。実験ステージがある程度冷えたら超伝導ヒートスイッチにゆっくり 400 mA 導入する (この際ヘリウム 3 ポットが僅かに昇温するが異常がなければその後すぐに冷える)。実験ステージが最低温に到達したら測定を開始し、超伝導ヒートスイッチの電流を段階的に下げていく。それに合わせて実験ステージは段階的に昇温していくので、これを利用して徐々に昇温する過程で測定を行う。超伝導ヒートスイッチが完全に OFF になったら温調を用いて測定する。ヘリウム 3 が枯渇した後は自然昇温中で測定を継続する。実験ステージがヘリウム 3 ポットから熱的に浮いているので、昇温は比較的ゆっくりであるから、昇温中でも短時間で済む実験は十分行うことができる。

図 A.4 に、実験ステージの実際の写真を示している。実験ステージは機械的な補助のために超伝導ヒートスイッチ以外に断熱性能が高い支柱で支えている。柱は CuNi 管の両端に真鍮をはんだ付けしてねじ止めできるようにした部品と、Vespel SP-22 で作成したネジからなる。Vespel は特に低温で熱絶縁が良いが、機械的には剪断方向に弱く損傷しやすい。そのため Vespel は最低限として CuNi の柱との間に差しはさむ形で使用している。

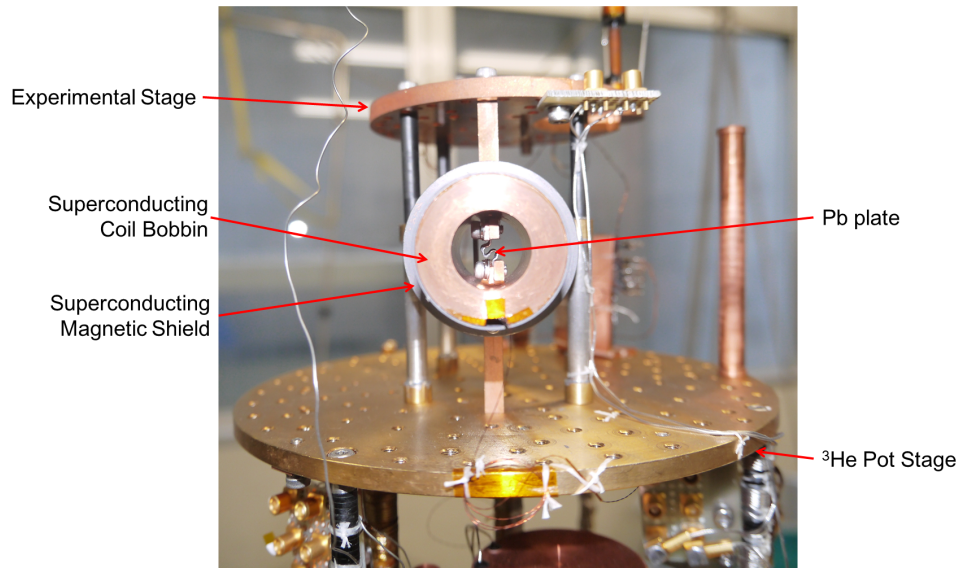


図 A.3. 超伝導ヒートスイッチの写真。室温で実験準備をする際には冷凍機を 180° 回転させているため、冷却時とは上下逆の状態である。

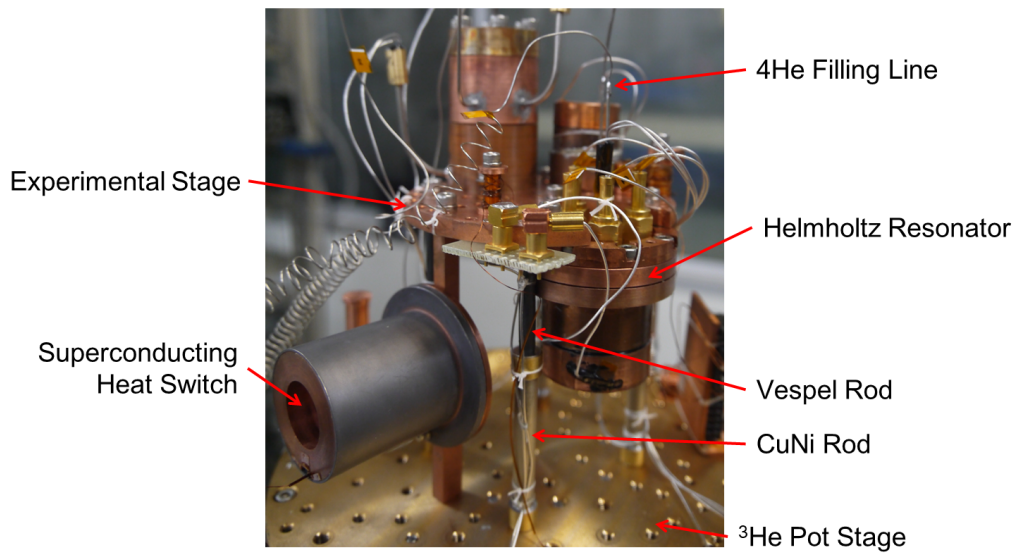


図 A.4. 実験ステージに Helmholtz 共振器を搭載した状態の写真。実験ステージには更に抵抗温度計とマンガン線で作成したヒーターが搭載されている。冷却時とは上下逆の状態である。

Vycor スーパーリーク

液体ヘリウム実験ではキャピラリを通して実験セルに気体ヘリウムを導入して液化する。そのため冷凍機の温度に対応してキャピラリの中にも液体が存在しており、低温では超流動状態になっている。超流動ヘリウムは二流体性のために超熱輸送と呼ばれる高い熱伝導性を持つ。そのためキャピラリ中の超流動ヘリウム 4 が伝える熱流入が問題になる場合がある。一般によく使用される ^3He - ^4He 希釈冷凍機は最低温にある実験空間である混合器ステージより高温に分留器と熱交換器のステージがあるため、最低温への熱負荷は段階的に落とされて問題になりにくい。無冷媒ヘリウム 3 冷凍機の場合、冷凍機の第二ステージ (~3 K) から最低温 300 mK まで直接繋がっており、その間で超流動転移するため大きな熱流入になる。これに対しキャピラリの内径を $\phi 0.1$ と細いものを用いて、ステージ間の長さを 1.5 m 程度に長く取っても大きな改善は見られなかった。

この超流動ヘリウム 4 による熱流入を抑制するため、Vycor ガラスをスーパーリークとしてヘリウム導入ラインに挿入した。スーパーリークとは常流動液体は粘性のために動けず、超流動成分のみが容易に透過できるような細い流路であり、エントロピーを担う常流動の運動を妨げるため熱流入を低減することができる。実際にこれによって最低温への熱流入は減少し、実験ステージの到達温度は低くなったが、実験セルへの液体ヘリウム 4 の導入はそのままでは困難になる。そのため後述のヘリウム 4 ポットを製作し、それによってスーパーリークの手前で液体ヘリウムが十分低温になり超流動性を持てるようにした。

Vycor スーパーリークの概略図と写真を図 A.5 に示す。ロッド状の Vycor ガラスを用いてその両端をヘリウム導入ラインに接続することで熱流入を遮断する。Vycor の外周部はカプトンシートを巻き付けて固めることでヘリウムが外部に漏れ出さないようにしている。この方法を取った理由は、CuNi の円筒に Stycast1266 を塗った Vycor を差し込んで固める方法では熱流入の遮断効果はほとんど見られず、その原因は低温での熱収縮の差による接着部の剥離によると考えられたためである。Vycor の両端にはキャピラリをはんだ付けした銅製の部品を接着する。図の上部の部品は室温部から繋がる試料導入ラインに接続し、図の下部の部品のキャピラリを実験セルに接続して全体を実験ステージにねじ止めする。図の下部の部品には実際にはもう 1 本キャピラリを用意しておき (図 A.5(b))、室温において実験装置の準備の際にガスハンドリングシステムに接続する。これは Vycor を通る気体ヘリウムの流量が小さく、実験装置内を気体ヘリウムで清掃する作業 (フラッシュ) が進まないためで、このラインを実験セル側のフラッシュに使用する。冷却前には実験セルを窒素トラップを用いて清浄にした気体ヘリウムで正圧にしたままラインをニッパーで潰し切り、はんだで封じる。窒素トラップを用いて清浄にした気体ヘリウムであればその後冷却までに真空引きしき

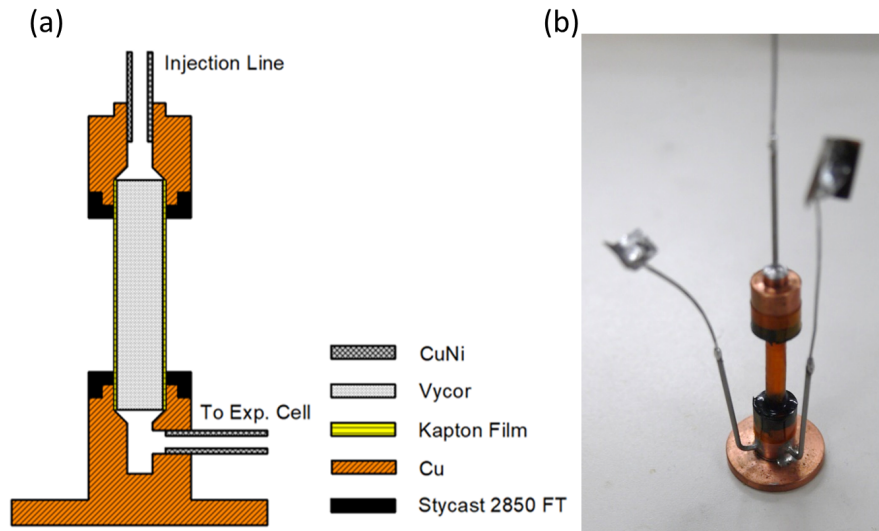


図 A.5. Vycor スーパーリークの (a) 概略図と (b) 写真。

れずに残っても詰まりの原因にはならない。

Vycor ガラスは接着前に下処理を行った。30% の過酸化水素水 ($\text{H}_2\text{O}_2\text{aq}$) で 80°C で 24 時間煮沸し、その後 150°C で加熱しながら 72 時間以上脱気した。この Vycor をグローブバッグを用いて気体ヘリウム雰囲気中において、Stycast1266 を用いて厚み $25\ \mu\text{m}$ のカプトンシートを巻き付けて接着した。薄いシートでは皺ができやすく、厚いシートでは硬いため巻き付けにくい。Stycast が固化するまでは細い紐などで縛っておくと良い。カプトンシートを巻いた Vycor は銅の部品に片側ずつ、Stycast2850FT を用いて接着する。この時、銅の部品の外周部にカプトンテープを巻き付けて、全体を埋めるように Stycast2850FT を流し込むと良い (図 A.5)。これにより、Stycast2850FT が銅の部品を巻き込んで収縮するため、銅と Vycro の収縮率の差による剥離が生じない。

今回は $\phi 3.6$ の Vycor ロッドを使用した。Vycor が長いとヘリウムの導入に時間がかかり、現実的でなくなる場合がある。一方で Vycor が短いと Vycor や接着に用いた Stycast1266 自体の熱伝導が無視できなくなる可能性があるが、15 mm 程度で問題なく使用できているようであった。

ヘリウム 4 ポット

Vycor スーパーリークを用いて実験セルに液体ヘリウムを導入する場合、ほとんど常流動液体として導入する必要があるため多大な時間を要する。これは Vycor の箇所ではヘリウムが通りにくくなるため、その手前でヘリウムが溜まって液化し、冷凍機の第二ステージと熱交換して冷えにくいためである。この問題を解消するには Vycor スーパーリークの高温側を超流動転移温度より低温に維持する機構が必要である。本節では 1.5 K 程度の低温を長時間維持するヘリウム 4 ポットの製作について説明する。

製作したヘリウム 4 ポットは室温部から気体ヘリウム 4 を導入してポット内に液化し、室温部のロータリーポンプで排気することで減圧冷却を行う機構である。到達温度はポンプの排気能と配管のインピーダンスに依存するが、今回の場合 1.5 K 程度が実現できており、十分機能している。このヘリウム 4 ポットに熱アンカーを設けて実験セルのヘリウム導入ラインの温度を固定しておけば、Vycor に入る液体ヘリウム 4 は超流動となり、実験装置に液体ヘリウムを充填するのに要する時間は格段に早くなる。

ヘリウム 4 ポットの概略図を図 A.6 に示す。ヘリウム 4 ポットは冷凍機の第二ステージに固定した容器とそこからステンレス管で接続したポット部分からなる。ヘリウム 4 導入ラインからポットに入った気体ヘリウム 4 は第二ステージ側の容器まで拡散して全体を第二ステージ温度 (~ 3 K) に冷却し、液化してポットに溜まる。ポットの上部には音叉型水晶振動子が取り付けられており、これは液体ヘリウムに浸かり始めると共鳴特性が大きく変化するため、共鳴特性をモニターすることで液面の位置をある程度知ることができる。またポットには静電容量型歪み圧力計が取り付けられている。溜まった液体ヘリウム 4 を排気ラインからロータリーポンプで真空引きすることでポットが減圧冷却される。ステンレス鋼は熱伝導度が小さいため、ポットは第二ステージの温度とは別に低温を得ることができる。ポット上部の蓋は左右に伸びており、ここに熱アンカーをとることでキャピラリを 1.5 K に冷却する。

本研究においては実験セルをヘリウム 3 の減圧冷却により最低温に冷却しながら、ヘリウム 4 ポットで Vycor に入る液体ヘリウム 4 を冷却して実験セルに液体ヘリウム 4 を充填する。従ってヘリウム 4 ポットはヘリウム 3 が枯れる程度まで維持できれば良く、これは実際にはワンショットで十分である。ヘリウム 4 の排気中に導入ラインからポットへヘリウム 4 を導入し続ければ、流入する気体ヘリウムによってわずかに昇温して 1.7 K 程度ではあるが、持続的に冷却することも可能である。少なくとも 24 時間以上持続できることは確認している。また Vycor を用いない場合でも第二ステージ温度 (~ 3 K) より低温に落とすことができるため、実験セルへの熱流入を低減させることは可能であると期待される。

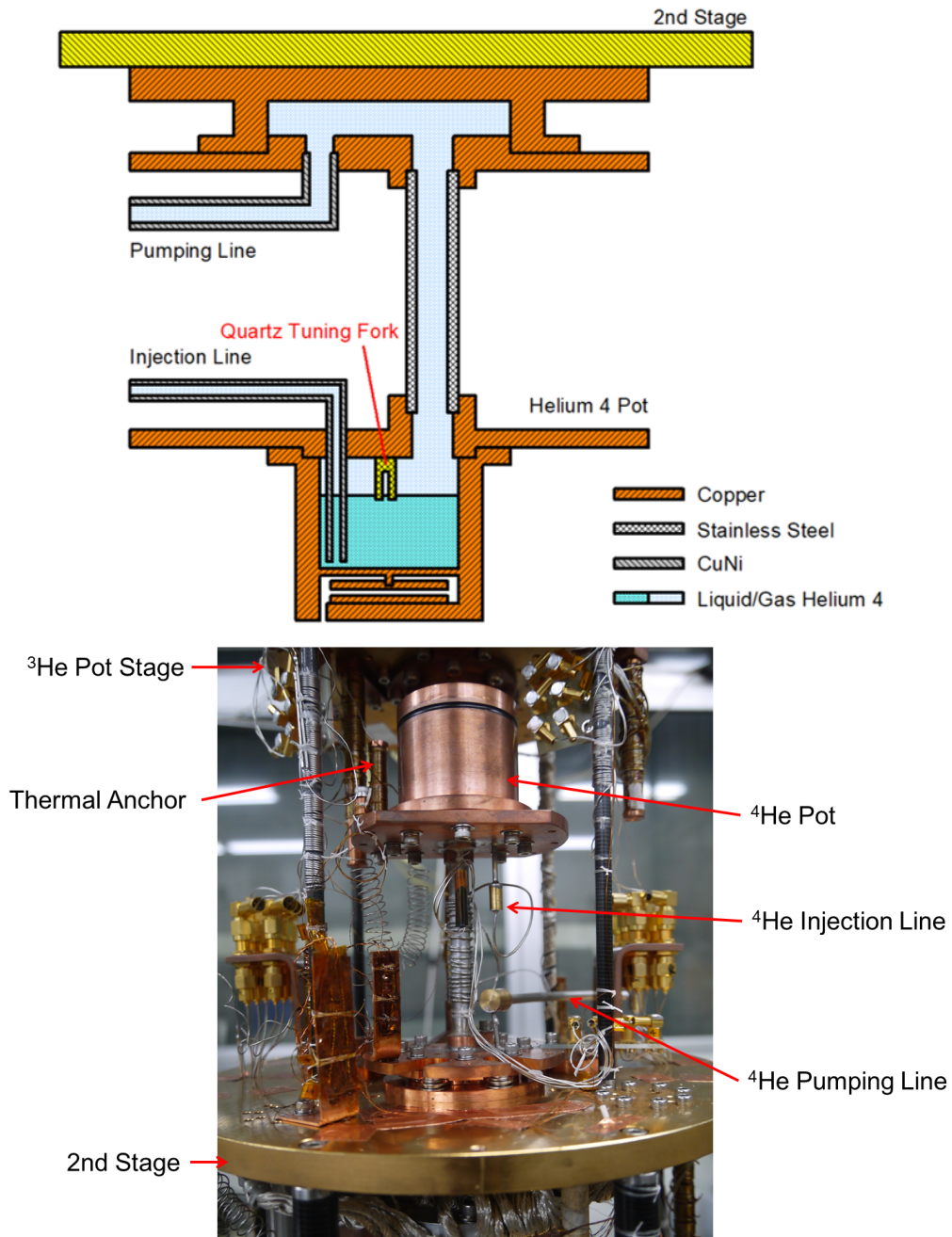


図 A.6. ヘリウム 4 ポットの概略図 (上) と写真 (下)。写真は冷却時とは上下逆の状態である。

補遺 B R_2 モードの第二音波との結合

本章ではバルク超流動転移温度 T_λ 以下の温度における共鳴周波数と散逸の乱れの原因として、Helmholtz 共鳴と第二音波 (超流動ヘリウムに特有の温度波、第 1 章) の結合についての考察を行う。本章の考察はバルク液体の散逸が安定して計測出来ていた Gelsil 試料 B の散逸に対して行う。

B.1 第二音波の定在波との結合

Gelsil 試料 B の散逸と共鳴周波数にはバルク超流動転移温度 T_λ 直下の温度で異常が見られていた。この異常は共振器内のバルク体積において第一音波や第二音波といったバルク超流動ヘリウム 4 中の音波が定在波を形成し、ダイアフラムの振動と結合することに起因すると考えられる。すなわち Helmholtz 共鳴の共鳴周波数と定在波の固有周波数が一致するときに共鳴周波数が反交差 (anti-crossing) し、散逸異常を生じる。第一音波は常流動においても存在し、第二音波に比べて大きな音速を持つ。 R_2 モードの周波数 f_2 に対してこの第一音波音速に対応する波長は長く、共振器内に定在波は形成されない。一方で第二音波は比較的小さな音速を持ち、以下に議論するように共振器内に定在波を形成する。また T_λ 近傍で音速がゼロから急速に成長するため、 R_2 モードの散逸と共鳴周波数の異常が T_λ 直下に集中する傾向と符合する。

第二音波は温度波であるため、ダイアフラムの振動による圧力波では励起されない。従って R_2 モードにおいて周期的な微小な発熱が存在することになる。この発熱の原因としてはダイアフラムの機械的な振動によるエネルギー散逸、ダイアフラムと電極の間の変位電流に伴う発熱が考えられる。前者の共振器の機械的なエネルギー散逸の場合、エネルギーの散逸量は散逸 Q^{-1} から見積もることができ、 R_2 モードの周波数 f_2 で周期的に発熱する。一方で後者の変位電流による発熱は、ダイアフラムと電極の間の誘電損失 G 、変位電流 I に対して I^2/G として見積もることができ、変位電流が f_2 で振動することから、発熱は共鳴周波数の 2 倍で振動することになる。発熱量はいずれの場合も数 nW 程度と見積もられ、Helmholtz 共鳴実験の温度の安定性に対して影響を与えない程度であるが、第二音波が十分励起される程度の発熱が存在している。

B.2 有限要素法解析による第二音波の定在波モードの同定

共振器の形状の複雑さのため定在波の固有モードを解析的に求めるのは困難であるので、有限要素法 (Finite Element Method, FEM) 解析を行った。有限要素法では解析を行う系を多数の要素に分割し、未知の物理量を微小要素内で内挿した関数と節点で

の値を用いて数値的に求めるため、実際の系の複雑な境界条件の下でも解析を行う事ができる。第二音波は超流動ヘリウム4の二流体性に起因する温度波であるので厳密に取り扱うのは容易ではないが、本章の議論は定在波が励起する条件、すなわち音波の詳細な性質には依存せず音速と周波数で決まるモード形状を調べることにあるので、単に第二音波の音速を持つ通常の密度波としての音波を仮定して計算を行った。

解析には COMSOL Multiphysics の音響モジュールを用いて、圧力音響(フィジックス)の固有周波数(スタディ)の解析を行った。計算対象は共振器内部のバルク液体ヘリウム4の体積とし、境界は全てサウンドハード境界とした。

有限要素法解析の結果を図 B.1 に示す。図には最低次のモードから順に6つのモードを示しており、カラープロットは音圧を Pa 単位で表しているが、固有モードの解析では外力を仮定しないため音圧の大きさは重要ではない。各固有モードに対して、音速を 1 m/s から 20 m/s までで変化させたときの固有周波数を求め(パラメトリックスイープ)、固有周波数が音速に比例することを確認した。図中には各固有モードの第二音波音速 c_2 と固有周波数 f の間の比例関係を示しており、この数値的な関係を用いて R_2 モードと第二音波の定在波との結合を考察する。

図 B.2 に第二音波音速 c_2 と R_2 モードの周波数 f_2 の関係を示している。図中のプロットは第二音波音速の温度依存性を示しており、実験データに近い圧力のデータを

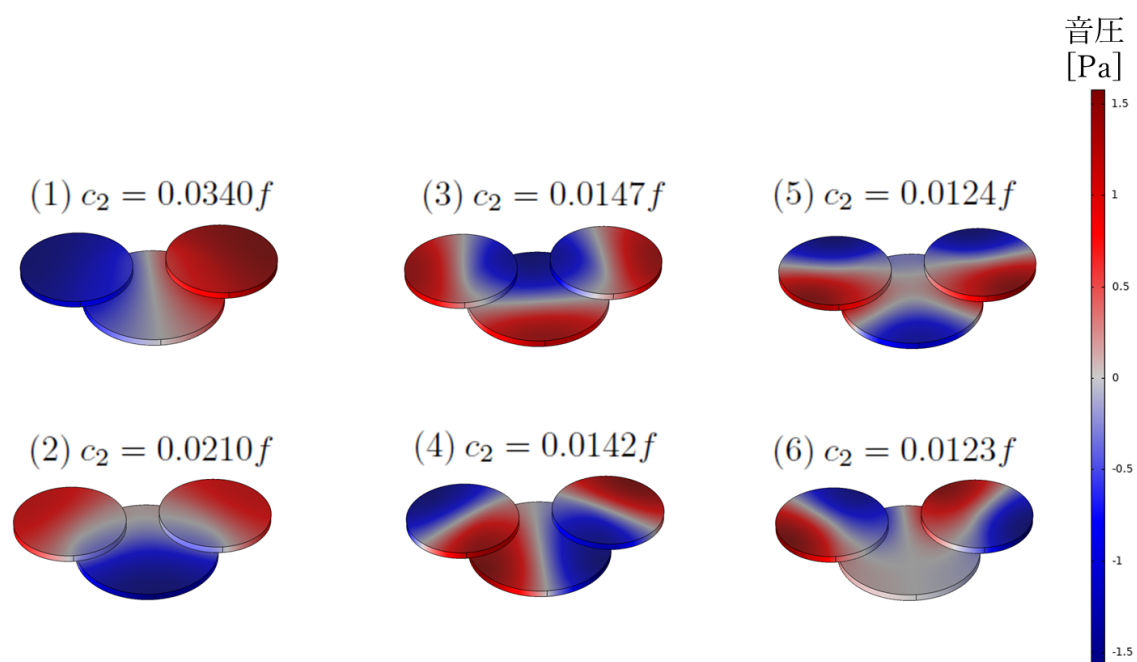


図 B.1. 共振器の内部体積を満たす液体ヘリウム4における第二音波定在波の固有モード。最低次のモードから順に6つのモードを示している。カラープロットは音圧を表している。

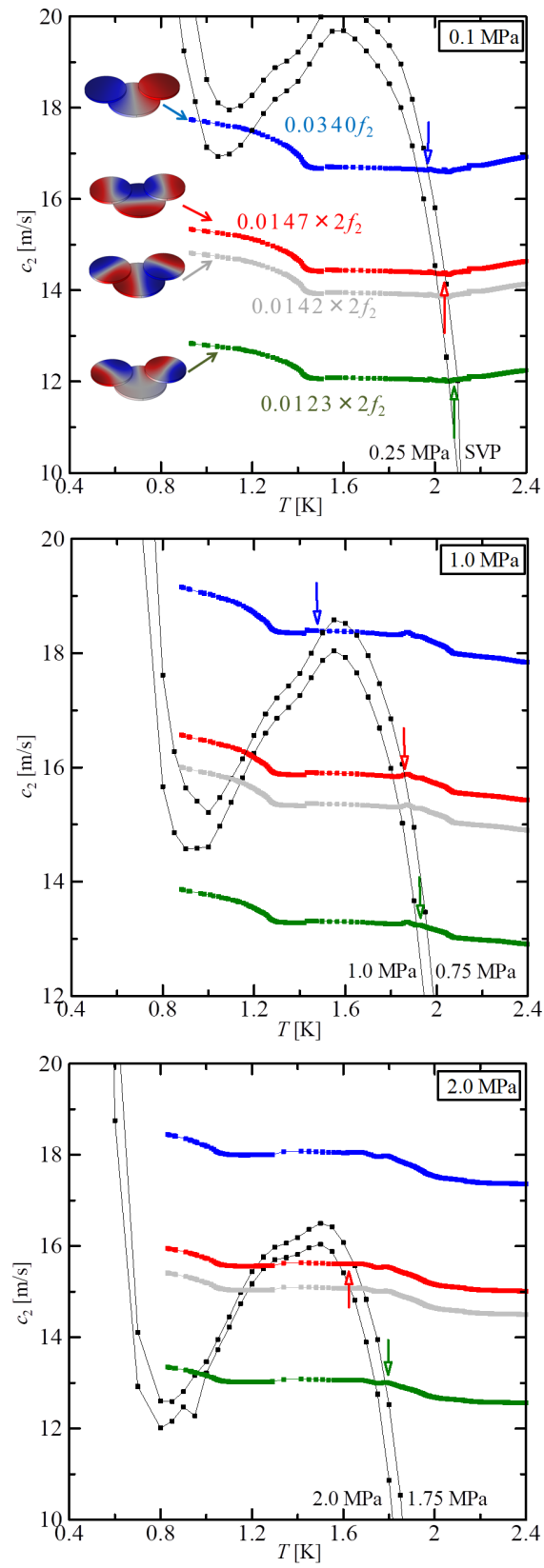


図 B.2. 第二音波音速と R_2 モードの周波数 f_2 の関係。矢印は散逸ピークの温度を示している。

参照している [89]。0.1 MPa では全温度域でほとんど 0.1 MPa で一定であったので、第二音波音速は 0.25 MPa と飽和蒸気圧 (Saturated Vapor Pressure, SVP) のデータの間に、SVP に近い値を取る。1.0 MPa と 2.0 MPa では T_c 近傍の低温ではそれぞれ 1.0 MPa、2.0 MPa であったが、 $T_\lambda \approx 2$ K 付近の高温ではそれぞれ 0.75 MPa、1.75 MPa に近い圧力であったので、第二音波音速も低温と高温で二つの音速データの間で滑らかに移り変わるような変化をする。青、赤と緑のプロットは第二音波の定在波が励起される条件により R_2 モードの周波数 f_2 を音速で表したものである。これらのプロットと第二音波音速のプロットが交差する点において、 f_2 で振動するダイアフラムと第二音波の定在波が結合する。矢印は散逸ピークの温度を表し、この交点に対応する。灰色のプロットは第二音波との結合が見られていない $c_2 = 0.0142f$ のモードであり、何らかの実験的な条件によって励起されにくくなっているものと考えられる。あるいは他のモードと混在して判別が困難になっている可能性もあるため、図中に明示している。

図 B.1 に示す固有モードのうち、実験データから R_2 モードと結合していると考えられるものは最低次 ($c_2 = 0.0340f$)、3 次 ($c_2 = 0.0147f$)、6 次 ($c_2 = 0.0123f$) のモードである。5 次 ($c_2 = 0.0124f$) のモードは 6 次のモードとほぼ同じ固有周波数を持つためどちらが励起しているかは明らかではなく、また共に励起して混在している可能性も考えられる。1 次のモードのみ f_2 で振動するモード、その他のモードは $2f_2$ で振動するモードであると仮定すると第二音波との結合が生じる温度を良く説明できる。このことから、1 次のモードのみダイアフラムの機械的振動による微小な発熱によって励起された第二音波の定在波、その他のモードはダイアフラムから電極への変位電流によって生じた発熱によって励起された第二音波の定在波であると考えられる。1 次のモードは 2 倍周波数ではより高い音速に位置するため、Helmholtz 共鳴実験の温度域から外れる。また高次の定在波モードは f_2 で励起される場合、より低い音速に位置するため、 T_λ 直下に集中すると期待され、判別が困難である。また本章の議論では重要ではない。また観測されていない 2 次のモードは、励起し得たとしても f_2 では低い音速に位置して T_λ 直下に局在して判別不可能となり、2 倍周波数では高い音速に位置するため R_2 モードとの結合は観測されない。

上述の定在波モードを仮定すると、 R_2 モードと第二音波音速の結合による散逸異常が圧力によって変化していたことが説明できる。0.1 MPa では $T_c < T < T_\lambda$ において第二音波音速と定在波が励起する条件が交差する温度は T_λ 直下に集中しており、またそこでは第二音波音速の温度変化が急峻であるため、散逸ピークは温度に対して鋭くなる。1.0 MPa では 3 次以上のモードとは T_λ 付近で結合し、1 次のモードとは第二音波特有の音速の極大付近で結合する。音速の極大付近では音速の温度変化がブロードになっているため、その周辺では広い温度域に亘って散逸の異常が広がることになる。

この温度域は図 B.2 からおよそ 1.4~1.8 K 程度と見積もれ、これは散逸のデータの振舞いと符合する。2.0 MPa では 3 次のモードが同様に第二音波音速の極大に掛かっており、1.3~1.6 K 付近に散逸ピークがブロードに分布していることと符合する。

以上のことから、第 6 章で議論した $T_c < T < T_\lambda$ の散逸の振舞いはバルク液体の粘性散逸による寄与と、第二音波定在波とダイアフラムの振動が結合したことによる散逸として記述できると結論付けた。また第二音波との結合は T_c 以下の温度においても影響すると考えられる。0.1 MPa では 1 次のモードを除いて T_c 以下では第二音波と結合するモードは存在しない。1 次のモードは参考のために参照している 0.25 MPa の音速とは交差するが、0.1MPa の音速はむしろ SVP に近く、第二音波の定在波とは 1 K 程度で接近する程度である。一方で 1.0 MPa では 3 次のモード、2.0 MPa では 6 次のモードが T_c 直下で第二音波音速と交差しており、 T_c 直下で散逸に異常を示すと考えられる。この T_c 直下における第二音波との結合が、第 6 章で議論した超流動転移に伴う散逸異常の評価が高圧のデータで不一致を示していたことの原因となっていると考えられる。

補遺 C R₃ モードの共鳴特性

本章では、Gelsil 試料 B に対して実験的に得られている R₃ モード (連成振動モードのうち、基本モード R₂ の一つ高次のモード) の共鳴特性を議論する。図 C.1 には共鳴周波数 f_3 と散逸 Q^{-1} の温度依存性を示しており、バルク超流動転移温度と Gelsil 中超流動転移温度をそれぞれ T_λ 、 T_c として示している (ここでの T_c は後述の臨界現象を議論する際の臨界温度としての T_c であり、超流動オンセット温度ではない)。共鳴周波数と散逸の温度依存性は概ね R₂ モードと同様であり、バルク超流動転移と Gelsil 中超流動転移が明確に観測されている。

R₃ モードの共鳴の機構は現在のところ明らかではないが、R₂ モードと同様の関係式、すなわち $f_3^{-2}(T_c) - f_3^{-2}(T) \propto \rho_s$ として超流動密度 ρ_s を評価できると仮定すると、図 C.2 に示すように臨界現象を議論できる。R₃ モードにおいても超流動密度の臨界指数は 3 つの圧力に対して $\zeta = 1.00 \pm 0.05$ となり、高い精度で 4 次元 XY の臨界指数が得られていることが分かる。但しこの議論においては共鳴周波数 f_3 の表式が分かっておらず、 ρ_s の見積もりの妥当性が明らかでない点は注意が必要である。実際に広い温度域で見ると、R₁ モードや R₂ モードで得られている ρ_s の温度依存性は f_2 と同じ表式では f_3 とは合っていない。この原因が f_3 と f_2 の表式の違いに起因するものか、 ρ_s 自体が周波数依存性を持っているのかは明らかではない。ここではそのようなモード間の違いは T_c 近傍ではあまり重要ではないと仮定して臨界現象の議論を行っている。このように R₃ モードにおける ρ_s の評価は妥当性を保障できないため、R₃ モードの解析のみからは必ずしも 4 次元 XY 臨界性を結論付けることはできないが、R₂ モードの解析と一致する結果が得られている。

また散逸は 3 つの圧力において T_c 以下の温度で明確にブロードなピークを持っている。またこの温度域で散逸が細かく乱れている様子も R₂ モードと同様である。このブロードなピークは 6 章で議論した、局在 BEC 間の位相整合プロセスで説明できると期待されるが、R₃ モードの共鳴の機構が完全には理解されていないため、詳細な解析は行えていない。しかしながら、観測事実として Gelsil 中 ⁴He に固有な散逸異常が R₃ モードにおいても存在していることが分かる。

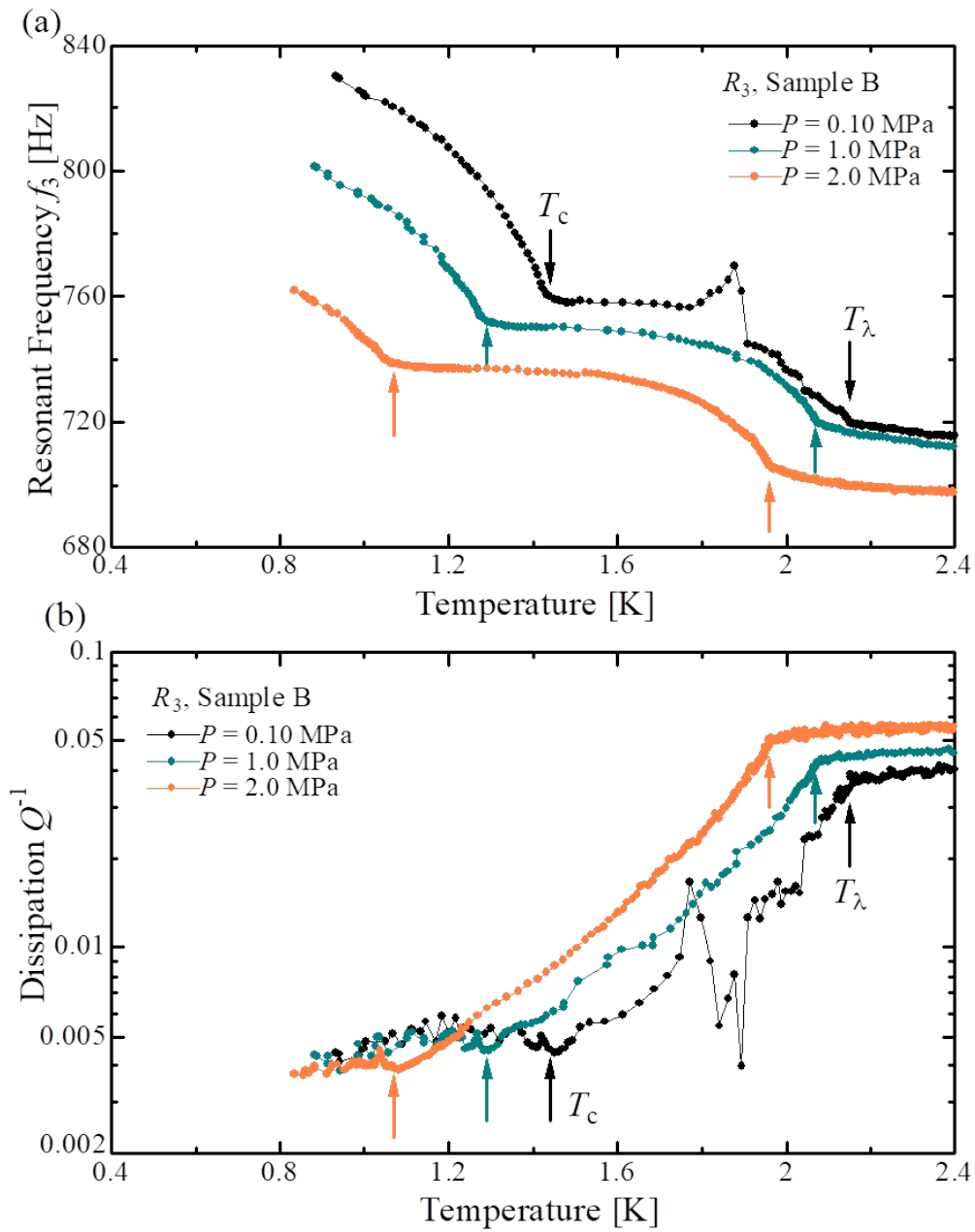


図 C.1. 試料 B における R_3 モードの (a) 共鳴周波数 f_3 と (b) 散逸 Q^{-1} の温度依存性。バルク超流動転移温度と Gelsil 中超流動転移温度 (臨界温度) をそれぞれ T_λ 、 T_c として示している。

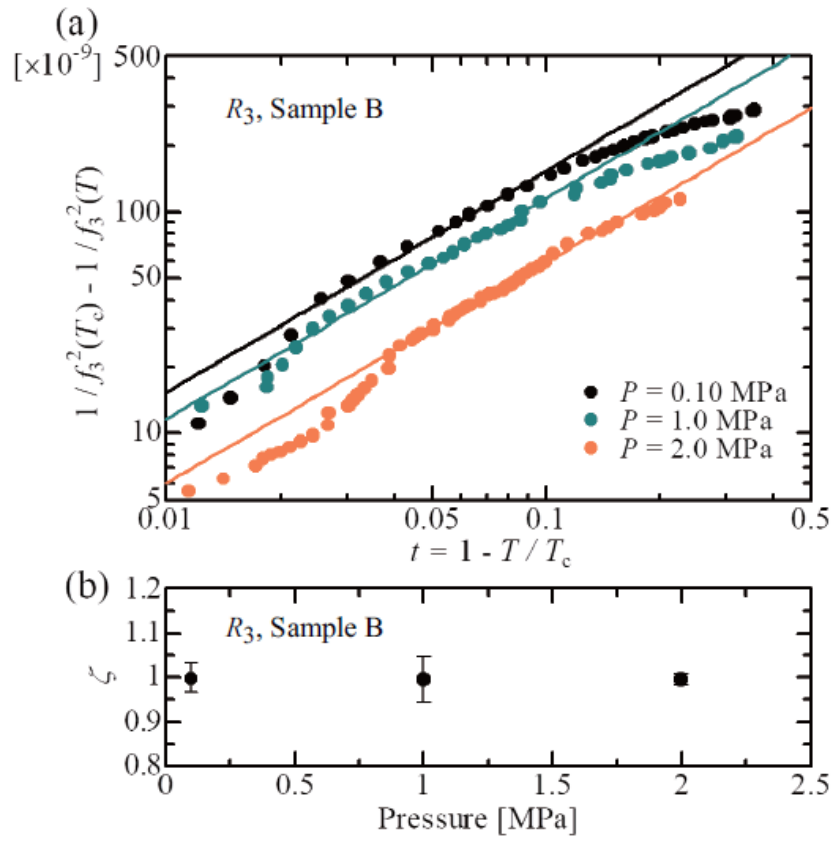


図 C.2. (a) R_3 モードの共鳴周波数 f_3 から得られた超流動密度 ρ_s の換算温度 $t = 1 - T/T_c$ 依存性。(b) 各圧力のデータから得られた超流動臨界指数 ζ の値。

補遺 D Vycor ガラスによる Helmholtz 共鳴の予備実験

Gelsil 中ヘリウム 4 の Helmholtz 共鳴実験に先立って、Vycor ガラスを用いた予備実験を行った。Vycor は平均孔径 6.6 nm の多孔質ガラスである。Vycor は過去に様々な多孔体中ヘリウム 4 の物性研究に使用されており、超流動転移温度などを参照できて多孔体中超流動転移の同定が可能であるため、Vycor を用いた予備実験によって Helmholtz 共振器の振舞いを調べた。また Vycor 中ヘリウム 4 の物性は超流動転移の抑制など有限サイズ効果が見られるものの、臨界挙動を含めバルク超流動ヘリウム 4 と物性は大きくは異ならない。そのため Vycor で得られた実験結果は Gelsil の結果と比較することで量子相転移の考察において参考になる。

図 D.1 に Vycor を用いた Helmholtz 共鳴実験の結果として、1 気圧における共鳴周波数と散逸 Q^{-1} の温度依存性を示す。バルクと Vycor 中の超流動転移温度をそれぞれ T_λ と T_c で示している。散逸は T_λ と T_c で共に特徴的な減少を示している。共鳴周波数は T_λ での増加は小さいが見られており、 T_c では低温に向かって急激に増加している。それぞれ 2.17 K と 1.97 K であり、良く知られている超流動転移温度と良く一致していることからバルクと Vycor 中超流動転移であると判断した。 T_c 以上の温度においては共鳴周波数は不安定であり、特に T_λ 以上では 2.4 K 付近で飛びを持っているが、低温の振舞いは安定している。

図 D.1 に見られるように、Vycor 中超流動転移温度 T_c において散逸 Q^{-1} は急激に減少しており、Gelsil ガラスの結果とは明確に異なっている。これは Gelsil の結果の解析においても議論しているように、Vycor 中超流動転移によって共振器の内外の体積の間に質量流が生じることで共振器全体としての散逸が減少するためである。この散逸の特性は定性的には多孔体の種類や形状に依存せず必ず生じるべきであるので、Gelsil ガラスにも同じ特性が現れるはずである。このことから Gelsil における T_c 以下の散逸の特性はこの超流動流による散逸の減少と Gelsil 特有の散逸異常が合わさって現れていると判断した。Vycor の結果と Gelsil の結果を比較しても、Gelsil における T_c 以下の温度の散逸特性は Gelsil に特有であることが分かる。

一方で共鳴周波数を用いた超流動密度の臨界指数の評価は十分には出来なかった。これは無冷媒ヘリウム 3 冷凍機の特長上、2 K 付近において温度を制御して実験することが困難であることに起因している。図 D.1 に見られるように、 T_c 近傍では共鳴周波数が鋭く変化するが、自然昇温中での測定では共鳴周波数変化に対して十分な数のデータが得られない。また本研究では周波数掃引によって共鳴特性を得ているが、厳密には周波数掃引の間に共鳴点が変化すると共鳴特性は正確さを失ってしまう。更に実験セル内では T_λ 近傍で圧力変動が存在しており、Vycor の T_c は Gelsil に比べて高く T_λ に近いいため、この影響を大きく受ける。超流動密度は圧力にも依存するため、こ

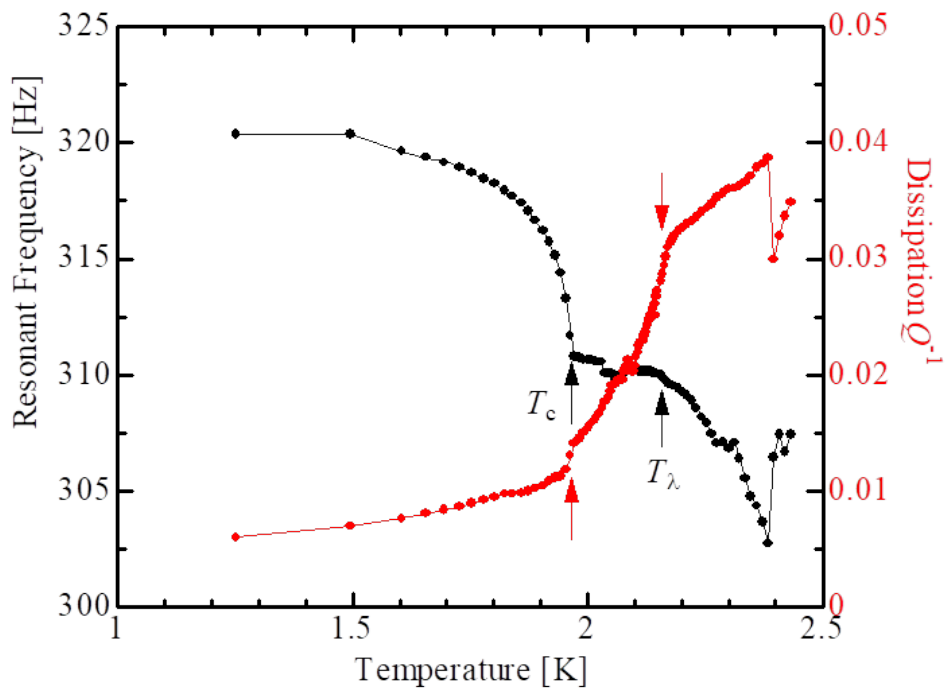


図 D.1. Vycor ガラスを用いた Helmholtz 共鳴実験で得られた共鳴特性の温度依存性。黒いプロットは左軸、赤いプロットは右軸に対応しており、それぞれ共鳴周波数と散逸 Q^{-1} である。バルクと Vycor 中へリウム 4 の転移温度はそれぞれ T_λ と T_c で示している。

の影響のために定圧での温度に対する臨界指数の評価は正しく行えなかったが、超流動臨界指数は概ね 0.6 ~ 0.7 の間の値を取っており、Gelsil 中の臨界指数とは明確に異なっていた。臨界指数が Vycor 中で得られている 2/3 に近い値を取るかは本研究では明瞭ではないが、Gelsil 中の超流動密度の臨界指数は Vycor とは異なっており、量子相転移の性質を受けた臨界現象を示していることを本研究の実験手法において示せていると言える。

補遺 E 1 次元ナノ多孔体 FSM 中ヘリウム 4 の Helmholtz 共鳴実験

低次元系では超流動を特徴付ける非対角長距離秩序が形成されないため、超流動性は現れないと考えられてきた。しかしながら 2 次元超流動が吸着薄膜ヘリウム 4 において実験的に観測されており、Kosterlitz-Thouless 転移であると理解されている [72]。そこでは渦対の乖離によって相転移が説明されている。さらに 1 次元超流動がナノ多孔体 FSM 中ヘリウム 4 において実験的に観測されている [8]。FSM(Folded Sheets Mesoporous Materials) はハニカム格子状の細孔が一軸方向に数百 nm 伸びた構造を持つ多孔体で、その中の超流動ヘリウム 4 は Bose 粒子における朝永-Luttinger 液体性を持つことが理論的に示唆されている [9]。特に FSM 中超流動転移を特徴付ける温度が観測周波数依存性を持つことが実験・理論の双方から示されている。しかしある同一の条件下において行われた実験は 2 つの周波数におけるもののみで、周波数依存性を完全には示せていない。本研究で用いた Helmholtz 共鳴実験の手法では、同一の条件下において複数の共鳴が得られるため、FSM 中の超流動転移の周波数依存性を詳細に調べることを目的として、FSM 中ヘリウム 4 の超流動測定を行った。

E.1 背景

FSM 中ヘリウム 4 の超流動転移は Taniguchi らによって捻れ振動子を用いて調べられている [73]。彼女らの実験では図 E.1 に示すように捻れロッドを 2 つ持つ振動子を用いており、これにより捻れ振動モードとして 2 つの共鳴周波数で測定することができる。この振動子を用いて、FSM 中超流動密度 ρ_s の立ち上がりの温度 T_0 と散逸がピークを持つ温度 T_p が測定周波数に依存して共に高周波数で高温にシフトしていることが実験的に確認された (図 E.1)。

FSM 中ヘリウム 4 の超流動転移を特徴付けるこれらの温度の測定周波数依存性は理論的にも調べられている [74]。図 E.2 に Eggel らによる理論計算の結果を示している。FSM 中で実現している 1 次元超流動はボース粒子系における朝永-Luttinger 液体として扱われる。彼らは Luttinger パラメーターを妥当な範囲で変えることで Taniguchi らの実験結果を理論計算で再現することに成功している。彼らの結果によれば、測定周波数を 2 桁程度変えたときに 0.1 K 程度超流動転移温度が変化する。

1 次元超流動では、多孔体内で位相スリップが生じることで超流動性が獲得され、超流動成分と常流動成分は同様に運動していると考えられている。超流動転移に伴って現れる散逸の異常はこの位相スリップを反映したものであると考えられる。

本実験では Helmholtz 共振器を用いて FSM 中ヘリウム 4 の超流動転移の測定周波数依存性を詳細に調べることを目的とする。2 つのダイアフラムを持つ Helmholtz 共

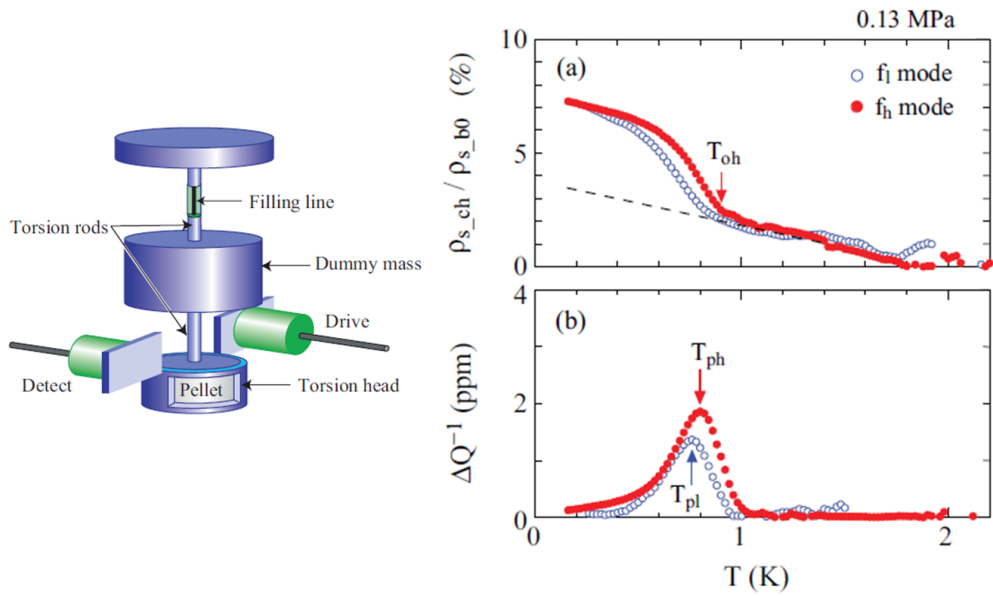


図 E.1. FSM 中ヘリウム 4 超流動の先行研究。左図は用いられた二重捻れ振動子の概略図、右図は異なる測定周波数における (a) 超流動密度 ρ_s と (b) 散逸の温度依存性。 T_{oh} は高次モードにおける ρ_s の立ち上がりの温度、 T_{ph} と T_{pl} はそれぞれ高次モード、低次モードにおける散逸のピーク温度である。

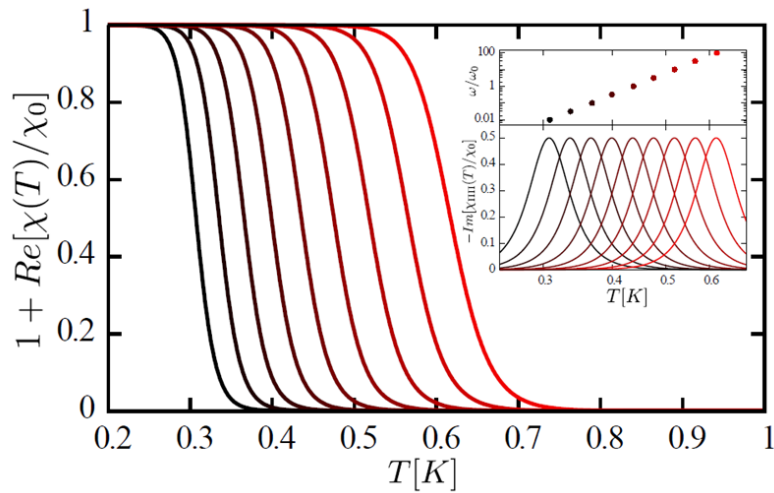


図 E.2. 異なる測定周波数における FSM 中ヘリウム 4 の超流動性の温度依存性の理論計算。図の縦軸は超流動密度に対応しており、下の挿図の縦軸は散逸に対応している。各計算曲線の色は上の挿図に示されている周波数に対応している。

振器では多数の共鳴が存在しており、これらは独立に超流動転移を検出すると考えられる。この性質を利用し、従来では一定のセットアップにおいて2つの周波数でしか測定出来なかったFSM中ヘリウム4の超流動転移を、同時に多数の共鳴を用いて測定することで、正確に詳細な周波数依存性を調べることを目的とする。

E.2 実験準備

本研究で用いた多孔体は細孔径 2.8 nm を持つ FSM16 である。FSM 試料は粉体であるので、実験の際には銀粉と混合してペレット状に固めたものを使用する [75]。銀粉は 200 メッシュで篩われたものから、300 メッシュの篩を用いて篩い落とされたものを使用した。これにより銀粉の粒径は概ね数十 μm に揃えることができる。銀粉は加熱脱気したのち乳鉢で砕き、FSM と混合して圧力下で加熱することで焼結する。作成したペレットは Gelsil と同様に Stycast を用いて実験セルに接着する。

実験には無冷媒ヘリウム 3 冷凍機を使用した。測定条件はバイアス電圧は 350 V とし、交流ドライブ電圧は 20 V_{pp} としていた。先行研究では超流動転移温度は 1 K 以下であったので、低温を得るために実験ステージと冷凍機のヘリウム 3 ポットは更に銅線で熱接触を取っている。

FSM のペレットでは FSM の粉体と銀粉の間隙に比較的大きな (数十 μm) の流路が存在し、そこでは常流動が流れることができる可能性がある。また超流動転移温度はバルクとほとんど変わらない。Helmholtz 共鳴においてはペレットの間隙部分の超流動転移はバルク転移と識別できないが、FSM 中超流動転移はそれらとは別に更に低温で見られると期待される。

E.3 実験結果

Helmholtz 共振器の共鳴特性の一例を図 E.3 に示す。5 kHz に至るまで多数の共鳴が観測されるが、高周波では共鳴が重なっている。このうち共鳴が顕著に見えている5つの共鳴の温度依存性を調べた。

図 E.4 に、0.07 MPa における4つの共鳴の共鳴周波数と散逸 Q^{-1} の温度依存性を示している。いずれの共鳴においても 2.1 K 付近で共鳴周波数と散逸の振舞いが顕著に変化しており、バルク超流動転移が観測できている。バルク転移点 T_λ の直下において共鳴周波数、散逸共に激しく乱れた振舞いをしているが、これは第二音波と共鳴が結合しているためと考えられる。

図 E.5 に低温の共鳴周波数と散逸の振舞いを示している。300 Hz 共鳴では 1.1 K 付近から共鳴周波数は更に上昇し、散逸も同じ温度から緩く上昇して 1 K 付近でブロードなピークを持っている。600 Hz 共鳴においても同様に 1 K 付近で共鳴周波数が増加

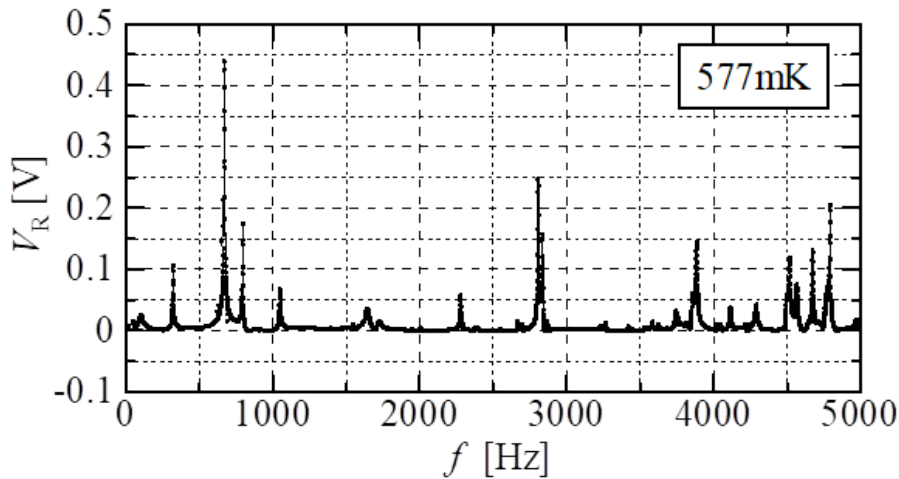


図 E.3. FSM を用いた測定における Helmholtz 共振器の共鳴特性の一例。

を始め、散逸はやはりピークを持つ。850 Hz 共鳴では低温での振舞いの変化は小さいが、やはり 1 K 付近で共鳴周波数が増加する様子が見られる。一方で散逸にはピークのような異常は見られない。1900 Hz 共鳴では散逸が減少に転じる振舞いが見られているが、共鳴周波数に変化は見られない。4 kHz 共鳴では散逸が僅かにピークを持ってその低温と高温で振舞いに変化している様子が見られ、それに対応して 1.05 K 付近で共鳴周波数が僅かに上昇しているように見える。低周波数のモードでは超流動転移に対応するような振舞いが見られているが、高周波数では振舞いが明瞭でない。散逸のピークを図中に矢印に示しているが、300 Hz と 600 Hz のモードでは 0.95 K 程度、1900 Hz と 4 kHz のモードでは 1.05 K 程度に散逸異常が見られ、1 桁の周波数の変化に対して 0.1 K 程度の超流動転移温度の変化が見られており、先行研究の結果より少し大きな変化ではあるがピーク温度が正確さに欠けることを考慮すると妥当な範囲であると言える。一方で 1900 Hz と 4 kHz 共鳴ではピーク温度の関係が逆転しており、もしこれが正しいければ超流動転移の周波数依存性は単調でない可能性があるが、測定点数が確保できていないこともあり、現在のデータからは正確な議論は困難である。

図 E.6 に圧力を 0.5 MPa としたときの低温の共鳴の様子を 0.07 MPa と比較して示している。FSM 中超流動転移温度は 0.07 MPa では 0.9 K と予想されるのに対し、0.5 MPa では 0.8 K と予想される。300 Hz 共鳴ではデータを取得できた温度域では共鳴周波数と散逸は共に低温に向かって増加しており、超流動転移温度を決定できなかった。600 Hz 共鳴では共鳴周波数は減少しているが、0.8 K 付近で上昇に転じているように見える。一方で散逸は少し高温の 0.95 K 付近から上昇し、0.75 K で極大を持っている様子が見られる。850 Hz 共鳴では 0.07 MPa の場合と同様で、散逸は単調に減少しており異常は判別できない。共鳴周波数は 1 K より高温から上昇しているように見

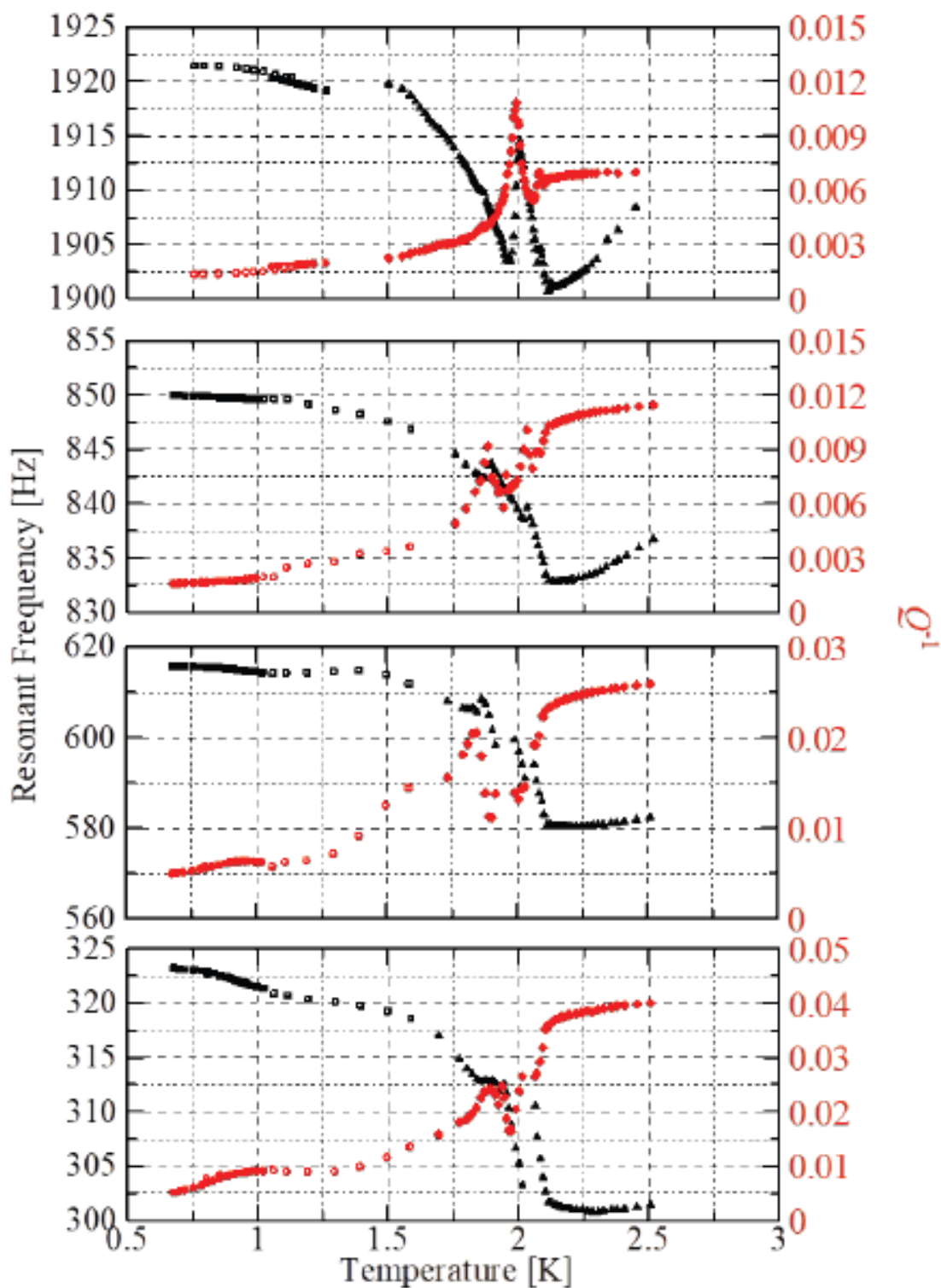


図 E.4. FSM を用いた Helmholtz 共鳴実験における共鳴特性の温度依存性。白抜きのプロットは冷却中、低温の四角のプロットは温調で昇温中、高温の三角のプロットは自然昇温中のデータである。

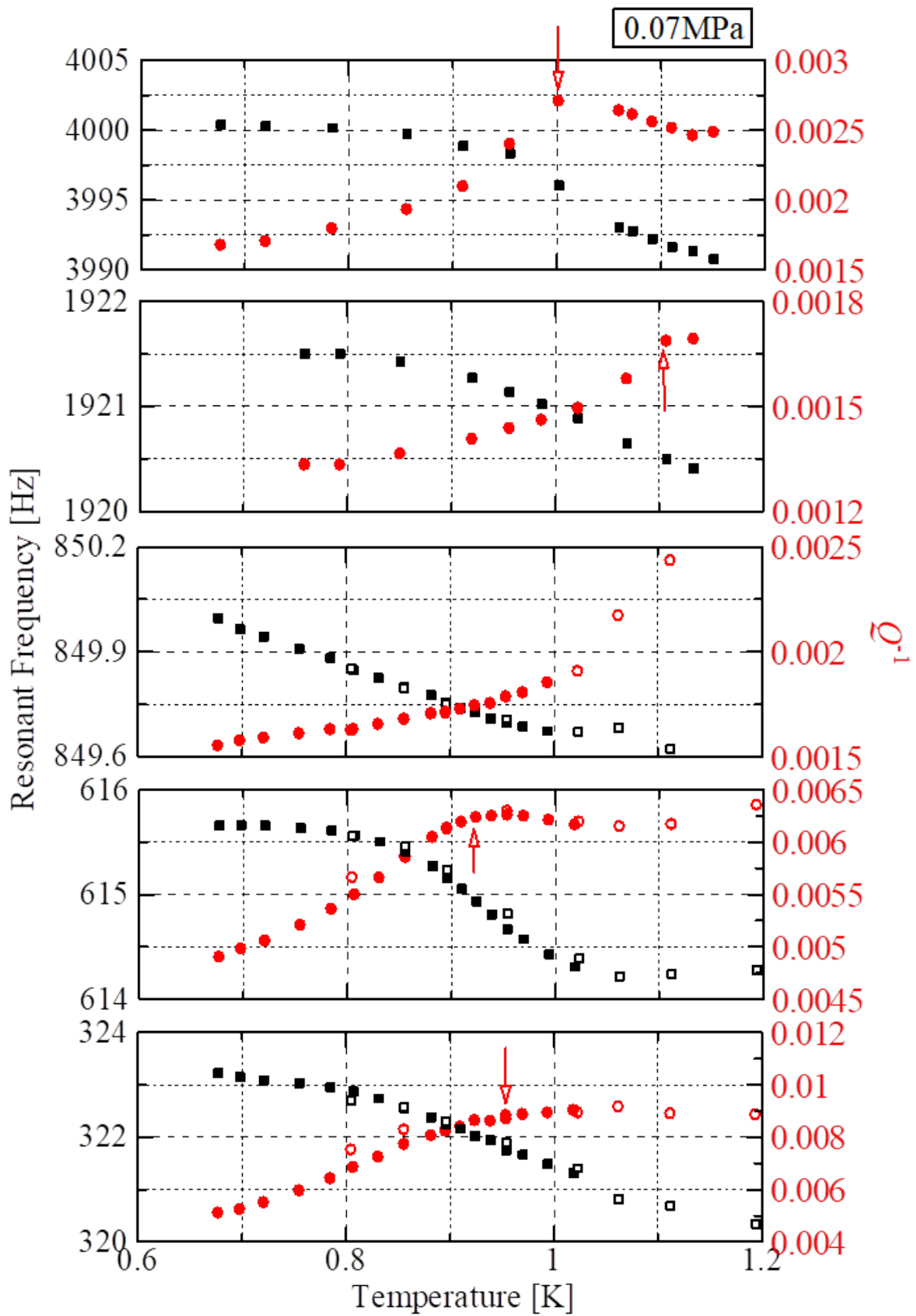


図 E.5. FSM を用いた Helmholtz 共鳴実験における共鳴特性の温度依存性。矢印は散逸の振舞いに変化がみられる温度を示している。

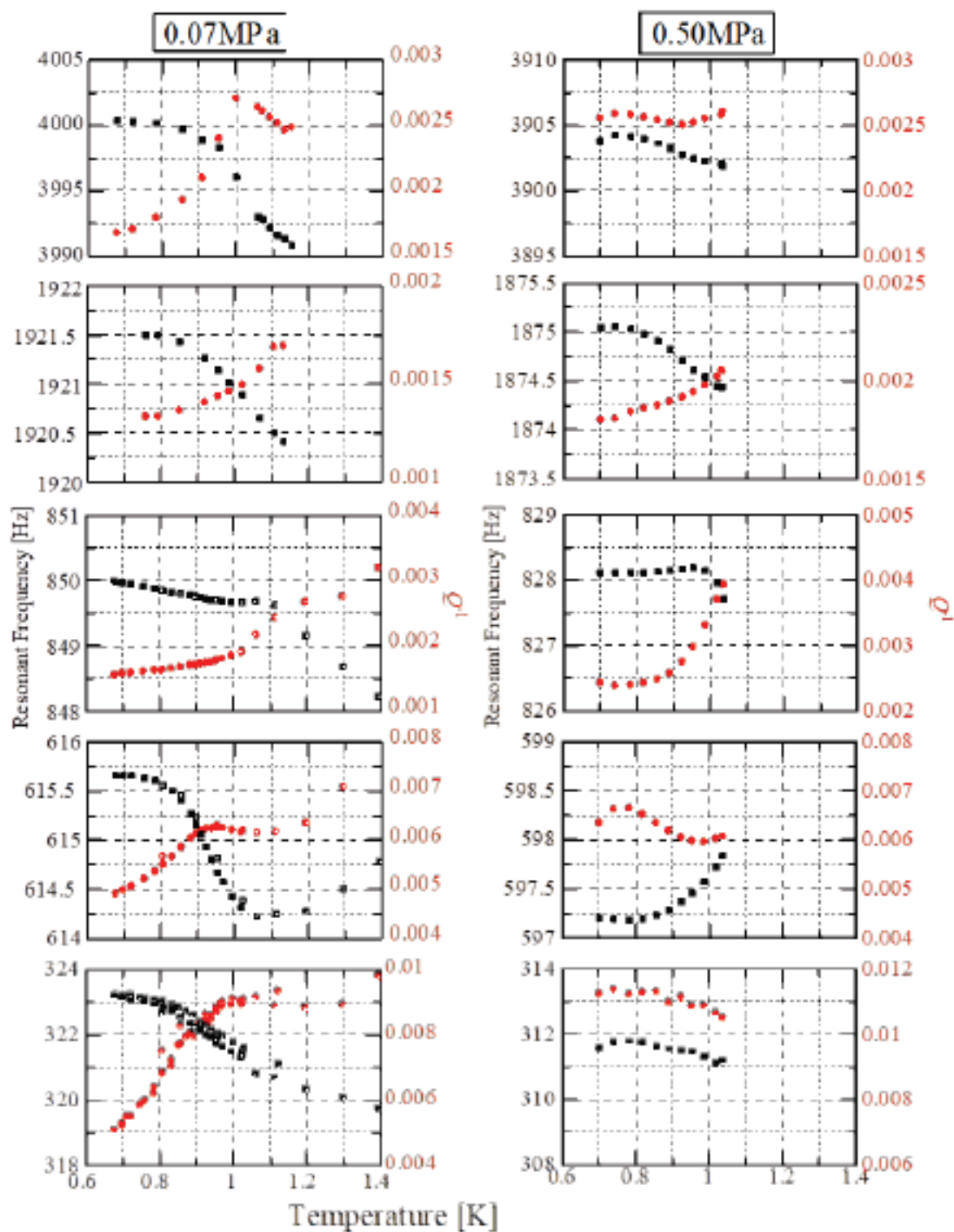


図 E.6. 異なる圧力における Helmholtz 共鳴の低温の特性。左の列は 0.07 MPa のデータであり、図 E.5 と同じである。右の列は 0.50 MPa のデータである。

えるが、低温では目立った振舞いの変化はない。1900 Hz と 4 kHz の共鳴では共鳴周波数が 0.95 K 付近で僅かに上昇しているように見え、散逸は 4 kHz 共鳴では 0.75 K 程度で極大を持つように見える。以上のように高圧では共鳴周波数と散逸の変化が現れる温度は低温にシフトしている傾向が見られるが、現在のデータでは系統性があまり見られず、超流動転移を議論するのは困難である。

図 E.7 に、冷凍機の超伝導ヒートスイッチを併用して測定しなおした 0.1 MPa における 4 つの共鳴の温度依存性を示す。Vycor スーパーリークを用いることで 0.5 K 程度の低温が得られており、比較的高温まで安定して測定ができています。1 K 以下の低温において共鳴周波数の増加や散逸のピークはほとんど見られない。但し 800 Hz 共鳴においては 0.75 K において散逸にブロードなピーク状の構造が見られる。

低周波のモードでは高温においてこれまでに見られなかった共鳴の異常が観測された。300 Hz 共鳴では 1.2 K において共鳴周波数が増加し、散逸がブロードなピークを持っている。同様の共鳴周波数の立ち上がりで散逸のピークが 600 Hz 共鳴では 1.35 K 付近に見られている。図 E.4 にこれらの異常が見られていなかったのは、この温度域で昇温が早く、周波数掃引に急激な共鳴変化がかからなかったためと考えられる。この共鳴周波数の変化と散逸のピークは FSM 中超流動転移で期待される振舞いに似ているが、この温度は先行研究に比べてかなり高い。また周波数に依存して異常を示す温度が高温にシフトしており、その傾向も期待されるものと同じであるが、この温度のシフトもかなり大きい。これらの理由から、新しく見られた共鳴周波数の増加と散逸ピークが超流動転移によるものであるとは結論付けられなかったが、測定手法等に敏感に依存する可能性もあり、超流動転移を否定することもできないものと思われる。800 Hz 以上の高次のモードでこれらの異常が見られていない理由も不明であり、更なる実験が必要である。

E.4 結論と課題

1 次元ナノ多孔体 FSM 中ヘリウム 4 の超流動転移の測定周波数依存性を詳細に調べるため、多重共鳴を持つ Helmholtz 共振器を用いて超流動応答の測定を行った。1 K 付近の低温において共鳴周波数の僅かな立ち上がりで散逸のピークがみられる共鳴がいくつか存在し、傾向として高周波ほどその特徴的な温度は高温にシフトする様子が見られた。この温度は先行研究に対して僅かに高い程度で一致している。しかしながらその変化は系統性が正確には議論できず、周波数依存性が単調でない可能性もあるが、詳細は不明である。一方で 1.2~1.4 K の高温においても低次のモードで共鳴周波数の立ち上がりで散逸ピークが見られた。この振舞いは比較的顕著に現れているが、超流動転移にしては温度が高く、この振舞いの原因は明らかでなく、更なる実験が必

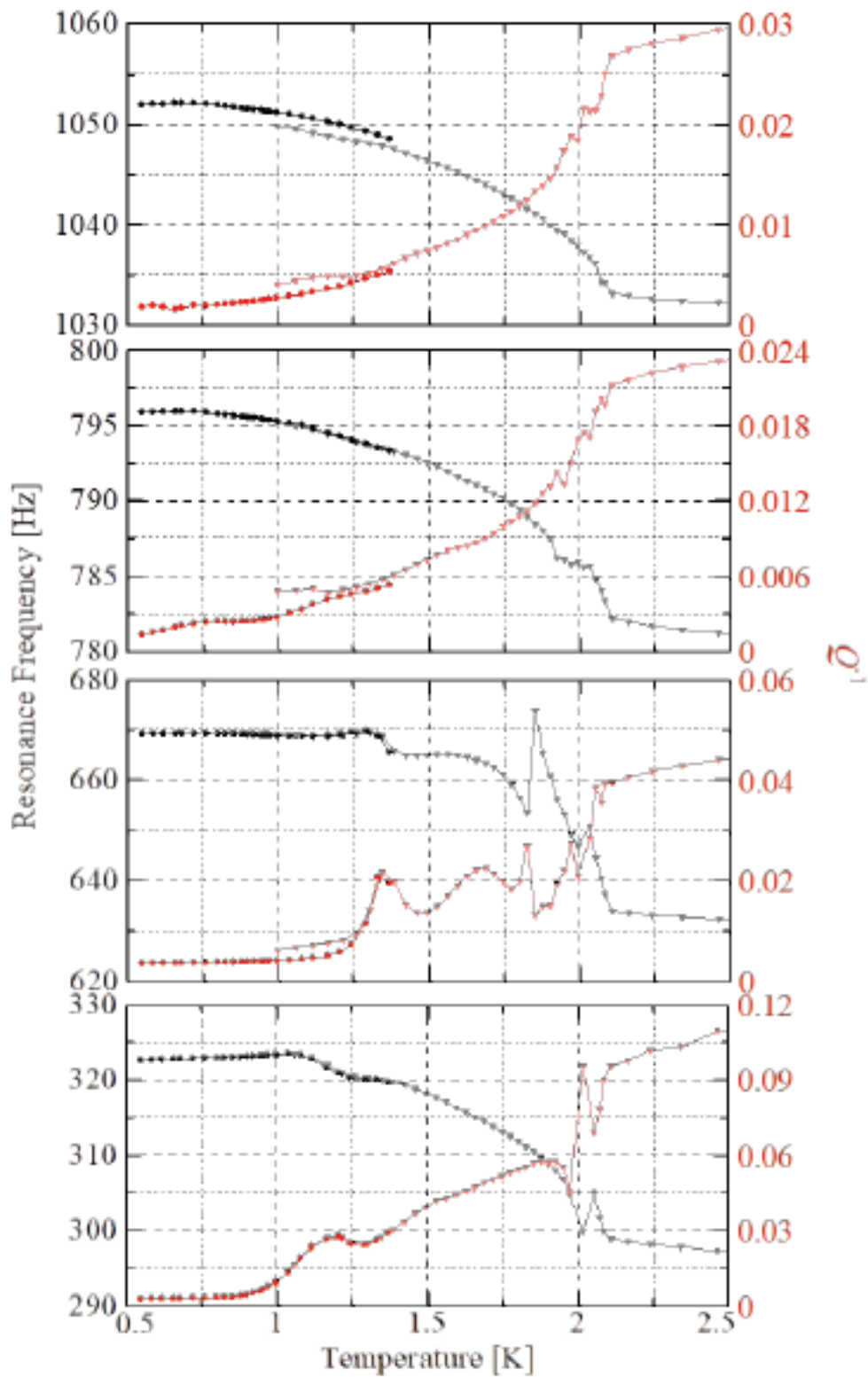


図 E.7. FSM を用いた Helmholtz 共鳴実験における共鳴特性の温度依存性。低温のプロットは温調で昇温中、高温のプロットは自然昇温中で測定している。

要である。

実験結果はバルク転移温度 T_{λ} 以下の温度で共鳴周波数と散逸の両方が乱れており、これは第二音波と共鳴が結合しているためと考えられる。一方で共振器の複雑さのために共鳴特性の温度変化は完全には理解されておらず、FSM 中超流動転移以外のバックグラウンドとしての共振器の挙動を把握できていない。そのため FSM 中超流動転移に伴う小さな共鳴変化を正確に評価するのが困難である。1つの対処法としては、FSM の分量を増やしたペレットを作成して実験を行うことである。これにより超流動転移に伴う共鳴の変化が明瞭になると共に、本実験の結果と直接比較することができると期待される。あるいは比較実験として FSM を含まない銀粉のみのペレットを使用して実験することで、FSM 以外の液体ヘリウム 4 の物性変化がもたらす共鳴の温度特性を実験的に把握することができ、FSM 中超流動転移による共鳴変化を抜き出すことができると期待される。

補遺 F トポロジカル超流動ヘリウム 3 の研究に向けた マイクロスリットの作成とヘリウム 4 の流れ実験

^4He の安定同位体である ^3He は Fermi 粒子であり、Cooper 対を形成して飽和蒸気圧下 1 mK 以下で超流動性を示す。 ^3He の Cooper 対は軌道角運動量 $L = 1$ 、スピン角運動量 $S = 1$ であり、p 波対のスピン 3 重項状態を取る。そのため秩序変数は軌道角運動量・スピン角運動量と、ゲージ対称性の破れによる自由度から $3 \times 3 \times 2 = 18$ の高い内部自由度を持つ。そのため複数の超流動状態を取り得て、エネルギーギャップに異方性を持つ。この異方性は l ベクトルと d ベクトル、 n ベクトルで記述される織目構造 (texture) を形成する。これらのベクトルで特徴付けられる超流動ヘリウム 3 の異方性は外部磁場や流れ場といった外的要因の影響を受けて変化する。特に制限空間の影響が強く、界面近傍では $^3\text{He-A}$ 相では l ベクトルが界面に垂直に並び、 $^3\text{He-B}$ 相ではバルクでは準等方的であったエネルギーギャップが歪んで n ベクトルが界面に垂直に並び、といった顕著な変化を受ける。界面ではエネルギーギャップが閉じ、そこではトポロジカル相転移が生じている、すなわち超流動ヘリウム 3 はトポロジカル物質であると考えられている。界面や量子渦の渦芯に準粒子の束縛状態を形成するが、そこでは Majorana Fermion が存在していると考えられており、また秩序変数の自由度を反映した 18 の集団励起としての Higgs Boson の存在など、興味深い物性を示す系である。

特に秩序変数の相関長 ξ の 10 倍にあたる $1 \mu\text{m}$ 程度の制限空間においては超流動ヘリウム 3 の内部自由度が良く制御され、また表面状態が顕著になるため、マイクロスケールの空間中に閉じ込めた超流動ヘリウム 3 の研究が関心を呼んでいる。昨今の微細加工技術の発展によりマイクロスラブ構造が実現できるようになり、制限空間中の実験が進んできた。我々はトポロジカル超流動ヘリウム 3 のマイクロスケール空間中の実験の新たな手法として、マイクロスリットの作成を行ってきた。これは従来では閉じたスラブ構造しか得られておらず、NMR や捻れ振動子を用いた実験が主流であったのに対し、マイクロスリットでは開口の構造を持つため、超音波の透過実験や超流動の流れ特性の研究を行えるようになるというものである。マイクロスリットの重要な点はスリットが相関長に比べて十分に長く、その中で超流動ヘリウム 3 の自由度が良く制御されていることである。このような系では表面状態を反映して現れる表面集団励起の出現や、半整数量子渦の安定化が期待される。超流動ヘリウム 3 では位相とスピンの π ずつ回ることによって半整数に量子化された量子渦が存在し得て、一軸異方性を持つ多孔体エアロジェル中で実験的に実現している polar 状態において半整数量子渦の存在が確認されている。一方で $^3\text{He-A}$ 相では様々な実験が行われているものの半整数量子渦は未だ観測されていない。マイクロスリット中の超流動流の位相スリップによって量子渦の状態を調べることができ、決定的な観測が可能であると期待される。

F.1 超流動ヘリウム3

液体ヘリウム3は ^3He 原子に基づく準粒子がCooper対を生成して対凝縮することで超流動転移を起こす。このCooper対は軌道角運動量とスピン角運動量はそれぞれ $L = 1$ 、 $S = 1$ であり、p波対のスピン3重項状態を取る。そのため超流動ヘリウム3は軌道角運動量、スピン角運動量の自由度に加え、ヘリウム4でも見られたように超流動特有の複素自由度を持つため、秩序変数は $(2S + 1) \times (2L + 1) \times 2 = 18$ の複雑な自由度を持つ。超流動ヘリウム3ではこの秩序変数の自由度を反映して複数の超流動状態が考えられるが、実際に(バルク超流動ヘリウム3で)安定化している状態は、高圧におけるA相と低圧におけるB相である。これらはそれぞれABM(Anderson Brinkman Morel)状態とBW(Balian Werthamer)状態に対応している。超流動ヘリウム3においてはCooper対を形成する引力相互作用はスピン揺らぎ(パラマグノン)である。

^3He -A相とB相の相違点はまず運動量空間におけるエネルギーギャップの形状に見られる。A相ではエネルギーギャップは運動量空間において極となる2点(ポイントノード)で消失するような構造を持っており、一方でB相ではs波対と同様な等法

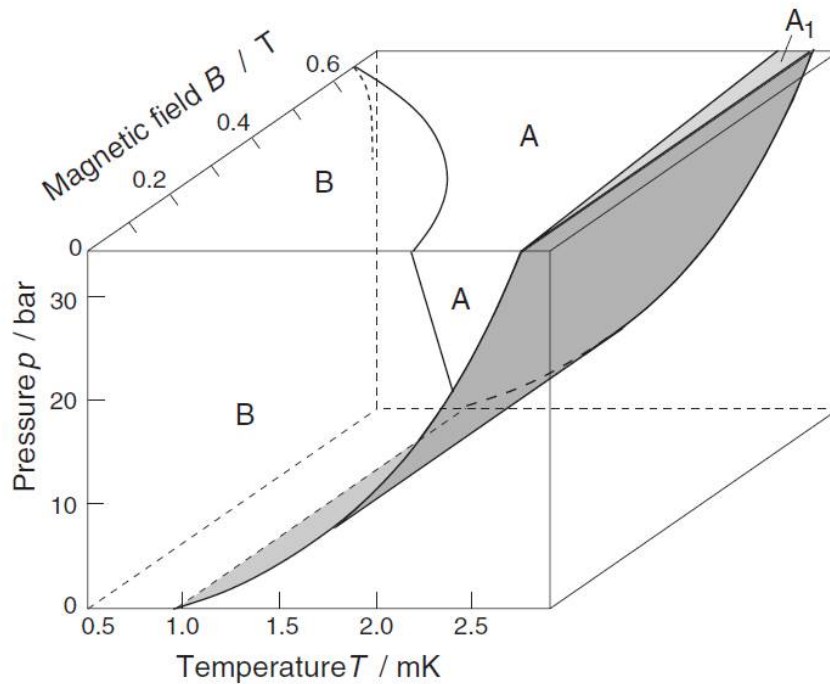


図 F.1. ヘリウム3(右図)の相図。低温で超流動相に相転移し、絶対零度まで液体として存在する。ヘリウム3超流動相は複数の相からなり、磁場にも依存する。

的なギャップを持つ。スピン状態 $|S, S_z\rangle$ は

$$|1, +1\rangle = |\uparrow\uparrow\rangle \quad (\text{F.1})$$

$$|1, 0\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle) \quad (\text{F.2})$$

$$|1, -1\rangle = |\downarrow\downarrow\rangle \quad (\text{F.3})$$

と書いて、これらの重ね合わせの状態を取る。B 相ではこれらのすべての状態が重ね合わさっており、A 相では $|\uparrow\uparrow\rangle$ と $|\downarrow\downarrow\rangle$ の重ね合わせの状態となる (equal spin pairing)。さらに A 相に磁場を印加するとスピン状態が磁場に対応して $|\uparrow\uparrow\rangle$ のみからなる状態が現れ、これを A_1 相と呼ぶ。

超流動ヘリウム 3 の秩序状態を記述するために、3 次元の複素ベクトル $\mathbf{d}(\hat{\mathbf{k}})$ を用いて Cooper 対の対波動関数 $|\Psi\rangle$ を

$$|\Psi\rangle = -(d_x - id_y)|\uparrow\uparrow\rangle + (d_x + id_y)|\downarrow\downarrow\rangle + d_z[|\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle] \quad (\text{F.4})$$

と書く。 $\hat{\mathbf{k}}$ は波数空間で Fermi 面上の点を指定する単位ベクトルである。この複素ベクトル $\mathbf{d}(\hat{\mathbf{k}})$ は対振幅を表し、向きは準粒子対のスピンへの射影がゼロとなるように取る ($\mathbf{d} \cdot \mathbf{S} = 0$)。p 波対では $\mathbf{d}(\hat{\mathbf{k}})$ を 3×3 複素行列 $d_{\mu i}$ に拡張できる。

$$d_{\mu}(\hat{\mathbf{k}}) = \sum_i d_{\mu i} \hat{k}_i \quad (\text{F.5})$$

この行列 $d_{\mu i}$ を p 波超流動状態の秩序変数に採用する。秩序変数の自由度を反映して複数の超流動相が考えられるが、それらは常流動ヘリウム 3 が持っていた対称性

$$G = \text{SO}(s)_L \times \text{SO}(3)_S \times \text{U}(1)_{\phi} \times T \times P \quad (\text{F.6})$$

のうちいずれかの対称性を破る。各項はそれぞれ軌道空間、スピン空間の回転対称性、位相の大域ゲージ対称性、時間反転対称性、空間反転対称性を表す。

Balian Wethamer(BW) 状態： $^3\text{He-B}$ 相

外場や双極子相互作用を考えない場合、BW 状態の秩序変数は

$$d_{\mu i} = \Delta_B \delta_{\mu i} = \Delta_B \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (\text{F.7})$$

となり、複素変数 Δ_B は運動量空間で等方的なエネルギーギャップを表す。一方で ^3He 原子間の核磁気双極子相互作用を考慮すると、巨視的な双極子相互作用エネルギー E_D は

$$E_D \propto \int \frac{d\Omega}{4\pi} (3|\mathbf{d} \cdot \hat{\mathbf{k}}|^2 - |\mathbf{d}|^2) \quad (\text{F.8})$$

と書ける。この双極子エネルギーを最小化するためにはスピンと軌道との相対的な回転を考える必要がある。BW 状態の秩序変数を

$$d_{\mu i} = \Delta_B \exp(i\phi) R_{\mu i}(\mathbf{n}, \Theta) \quad (\text{F.9})$$

と書くと、 \mathbf{n} は軌道とスピンの間の相対回転の軸、 Θ は相対角である。自由エネルギーへの双極子相互作用の寄与は

$$F_D \propto \left(\cos \Theta + \frac{1}{4} \right)^2 \quad (\text{F.10})$$

と書けて、双極子エネルギーを最小にする回転角は $\Theta = 104^\circ$ となる。スピンと軌道の相対回転の対称性が破れているため、BW 状態が持つ対称性は

$$G_{\text{BW}} = \text{SO}(3)_{L+S=J} \times \text{T} \times \text{PU}_{\pi/2} \quad (\text{F.11})$$

となる。ここで $\text{PU}_{\pi/2}$ は空間反転と位相の $\pi/2$ 回転に対する離散対称性を表す。

このように $^3\text{He-B}$ 相はスピン空間と軌道空間において等方的であるため \mathbf{d} ベクトルの方向が巨視的に定まらないが、準粒子対の間に働く双極子相互作用のために軌道とスピンの相対回転の対称性が破れており、回転行列 $R_{\mu i}(\mathbf{n}, \Theta)$ における回転軸 \mathbf{n} が新しく $^3\text{He-B}$ 相の秩序を特徴づけるベクトルとなる。双極子相互作用が極めて弱いため $^3\text{He-B}$ 相は準等方的に扱えるが、 \mathbf{n} ベクトルは $^3\text{He-B}$ 相の異方性を表しており、境界条件や外場などの影響を受けて織目構造 (texture) を形成する。

Anderson Brinkman More(ABM) 状態： $^3\text{He-A}$ 相

ABM 状態の秩序変数は

$$d_{\mu i} = \Delta_A (\hat{\mathbf{d}})_\mu (\hat{\mathbf{m}} + i\hat{\mathbf{n}})_i = \Delta_A \begin{pmatrix} 1 & i & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (\text{F.12})$$

と書ける。 \mathbf{m} と \mathbf{n} は波数空間の単位ベクトルで、 $\hat{\mathbf{m}} \times \hat{\mathbf{n}} = \hat{\mathbf{l}}$ として Cooper 対の軌道角運動量の単位ベクトル $\hat{\mathbf{l}}$ を定義する。ABM 状態のエネルギーギャップは極座標に対して $|\Delta_A|^2 \sin^2 \theta$ と書けて、2 点のポイントノードでギャップが消失する。

ABM 状態では双極子エネルギーは

$$F_D \propto (\hat{\mathbf{d}} \cdot \hat{\mathbf{l}})^2 \quad (\text{F.13})$$

と書けて、 $\hat{\mathbf{d}}$ ベクトルを Cooper 対の軌道角運動量 $\hat{\mathbf{l}}$ の方向に揃えようとする。また ABM 状態の対称性は

$$G_{\text{ABM}} = \text{U}(1)_{L_z - \phi} \times \text{U}(1)_{S_z} \times \mathbb{Z}_2 \quad (\text{F.14})$$

であり、 $U(1)_{L_z-\phi}$ はギャップノード周りの回転対称性のうち、軌道とゲージの相対的な対称性を表し、 $U(1)_{S_z}$ はスピンに関するノード周りの対称性、 \mathbb{Z}_2 は離散対称性を表す。

F.2 マイクロ空間中の擬 2 次元超流動ヘリウム 3

バルクでは $^3\text{He-A}$ 相はエネルギーギャップに 2 つのポイントノードを持ち、 $^3\text{He-B}$ 相では準等方的なエネルギーギャップを形成する。 $^3\text{He-B}$ 相は界面近傍では秩序変数が抑制を受けてエネルギーギャップは歪み、界面ではノードを持つようになる (Planar 状態)。 $^3\text{He-B}$ 相の \mathbf{n} ベクトルはこのノードの向きを向くようになり、界面に沿って \mathbf{n} ベクトルが揃った状態が実現する。 $^3\text{He-A}$ 相ではもともと持っていたエネルギーギャップのノードが界面方向に向き、 \mathbf{l} ベクトルが界面に沿って揃った状態になる。制限空間中ではそれぞれの界面の影響を受けるが、超流動ヘリウム 3 のコヒーレンス長 ξ_3 の 10 倍程度のスケールでは、 \mathbf{l} ベクトルや \mathbf{n} ベクトルを急激に曲げるのに大きなエネルギーを要するため、これらのベクトルが制限空間中で良く揃った状態が実現する。以下ではこのような空間を、超流動秩序が制御されるスケールの空間という意味で擬二次元空間と呼ぶことにする。このような擬二次元空間は典型的に $1\ \mu\text{m}$ 程度の幅を持つスラブ構造として実現されてきた。そこでは NMR や捻れ振動子による超流動ヘリウム 3 の擬二次元物性の研究が為されてきた [76, 77]。

擬二次元超流動ヘリウム 3 ではその表面状態が重要になる。 $^3\text{He-B}$ はエネルギー

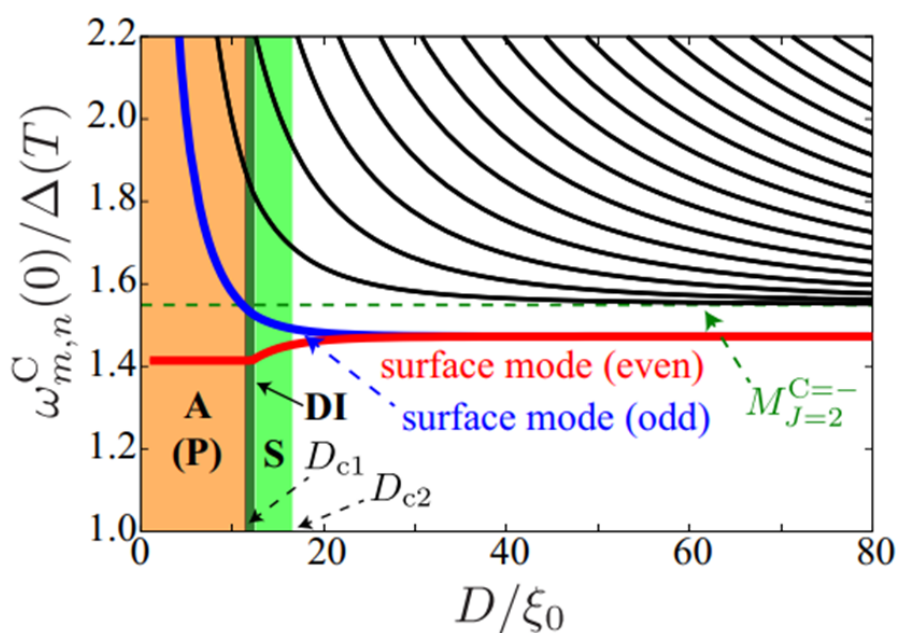


図 F.2. Mizushima らによって予言された表面集団励起の固有周波数の平行平板間距離依存性。

ギャップが界面において歪むことで特に顕著であり、表面集団励起と呼ばれる特別なモードが現れることが理論的に示唆されている (図 F.2)[78]。また $^3\text{He-A}$ 相においても秩序変数が二次元的になることでバルクにはない $\sqrt{2}\Delta$ のギャップをもつモードの存在が示唆されている [79]。

また $^3\text{He-A}$ 相においては、秩序変数の位相と d ベクトルが π ずつ回るような半整数量子渦の存在が期待される。半整数量子渦の存在は超流動ヘリウム 3 の Polar 相において実験的に発見された [80]。Polar 相とはエネルギーギャップが赤道上でゼロとなるラインノードを持つ状態であり、一軸異方性を持つ aerogel 中で実現する [81]。超伝導においては Sr_2RuO_4 中の磁束として半整数量子渦が観測されている [82]。一方で $^3\text{He-A}$ 相においては観測が試みられているものの現在でも発見されていない。

これまでマイクロスケールの制限空間を良く制御して作成する事が困難であったため、擬二次元空間中ヘリウム 3 の超流動物性研究は理論が先行してきたが、近年の微細加工技術の発展により超流動ヘリウム 3 の表面状態やトポジカル物性の実験が可能となってきた。本研究ではそのようなマイクロスケールの微細構造の一つとしてマイクロスリット構造を作成する。これは NMR 等に実験方法が限られていた従来の閉じたマイクロスラブ構造に対し、開口の構造を持つことで音波や超流動質量流など、透過する信号を測定することができるものであり、擬二次元空間中ヘリウム 3 の超流動物性研究に新たな手法を提供するものである。作成したマイクロスリットは超音波透過実験による表面集団励起モードの探索、 π 位相スリップとしての半整数量子渦の検証 [83] といった、擬二次元ヘリウム 3 の新奇超流動物性の実験的研究に用いる予定である。

F.3 マイクロスリット構造の作成

マイクロスリット構造には主に電子線描画 (Electron Beam (EB) Lithography) 技術と反応性イオンエッチング (Reactive Ion Etching, RIE) を用いる。電子線描画は EB レジストと呼ばれる電子線に反応する高分子化合物を塗布した基板に電子線を照射することでパターンニングを行う技術である。RIE はエッチングガス中でグロー放電プラズマを立てることで、ラジカルと基板の化学反応とイオンによる物理的なスパッタリングを組み合わせることで高いエッチングレートで直進性のあるエッチングを行う技術である。

本研究で作成するマイクロスリットの寸法は幅 $1\ \mu\text{m}$ 、長さ $100\ \mu\text{m}$ 、深さ $40\ \mu\text{m}$ である。幅 $1\ \mu\text{m}$ は擬二次元超流動ヘリウム 3 を実現するためであり、深さ $40\ \mu\text{m}$ はスリット内でヘリウム 3 の秩序状態が良く整うように (l と n が揃うように)、また表面状態の情報を十分引き出せるように決めた寸法である。長さ $100\ \mu\text{m}$ はあまり重要で

ないが、力学的にスリットの強度を確保できるように決めている。幅 $1\ \mu\text{m}$ に対して深さ $40\ \mu\text{m}$ という高いアスペクト比を持つ構造は、RIE でも通常の方法では作成が困難である。

こうした高いアスペクト比の構造を作成する技術として、BOSCH プロセスを利用した深堀 RIE が開発された [84]。通常の RIE では側面への回り込みが有限に存在してアンダーカットと呼ばれる構造を形成してしまう。これを回避するために BOSCH プロセスではエッチングと表面の不活性化 (passivation) を交互に行うことで、エッチングする構造の側面を保護しつつ深いエッチングが可能である。この方法を用いれば、高アスペクト比の構造を直進性良く作成することができる。但し側面にはスカロップと呼ばれる微小な凹凸構造が形成される。

図 F.3 に作成するマイクロスリット構造の概略図を断面図として示している。実際に作成するマイクロスリット構造は、実験において信号強度を増すため多数の同じ形状のスリットが並列に配列したものとする。マイクロスリットは深堀 RIE によって貫通することで作成するので、スリットの周辺は $40\ \mu\text{m}$ の厚みにしておく必要がある。一方でこの厚みでは製作の工程において破損し、また装置を損傷する危険があるので、十分厚い枠を設けた構造にしておく。実際には SOI (Silicon on Insulator) 基盤から切り出したチップを使用する。SOI 基盤は Si の薄いデバイス層と厚いハンドル層の間に絶縁体 (今回の場合 SiO_2) のボックス層が挟まった構造をした基板で、今回の場合はデバイス層は $105\ \mu\text{m}$ 、ボックス層 $1\ \mu\text{m}$ 、ハンドル層 $510\ \mu\text{m}$ の基盤を用いた。デバイス層は表面の結晶方位が $\langle 110 \rangle$ のものを使用する。これは後述の異方性エッチングをする際にスリット壁面を $\langle 111 \rangle$ 面にするためである。

マイクロスリット構造の製作手順を図 F.4 に示す。まず SOI 基盤をステルスダイサーを用いて $2\ \text{cm} \times 2\ \text{cm}$ もしくは $3\ \text{cm} \times 3\ \text{cm}$ のチップに分割し、デバイス層を精密研磨装置を用いて $40\ \mu\text{m}$ まで研磨する。マイクロスリット構造は枠を含めて $1\ \text{cm} \times 1\ \text{cm}$ として 1 つのチップにまとめて複数作成する。その後スパッタ成膜装置を用いて両面に Al もしくは AlSi (99% の Al に 1% の Si を混ぜたもの) を $150\ \text{nm}$ 成膜する

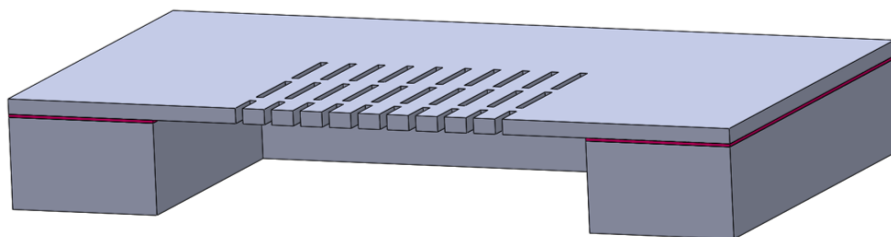


図 F.3. 作成するマイクロスリット構造の概略図。

(図 F.4(i))。これに対して裏側の枠構造の作成を行う。チップ表面にスピncerコーターを用いて EB レジスト ZEP-520A を塗布し、熱処理する。これに EB 描画を行い枠構造のパターニングを行う。これを現像処理した後、EB レジストをマスクとして塩素系 RIE により Al(AISi) 膜をエッチングする (図 F.4(ii))。この Al(AISi) をマスクとしてハンドル層 Si の深堀 RIE を行い、枠構造を作成する (図 F.4(iii))。次に表側の表面に同様に EB 描画によりマイクロスリットのパターニングを行う。同様にして Al(AISi) のエッチングを行い (図 F.4(iv))、それをマスクとして深堀 RIE でデバイス層にマイクロスリットを作成する (図 F.4(v))。その後、気相フッ酸エッチングによりボックス層の SiO₂ を除去して表面に残存した Al(AISi) は混酸アルミエッチング液に浸漬して除去する (図 F.4(vi))。最後にステルスダイサーを用いて、チップをそれぞれのマイクロスリット構造に分割する。

図 F.5 に、作成したマイクロスリット構造の表面と、それを劈開して断面を観察した SEM(走査型電子顕微鏡) 画像を示す。図 F.5(a) に示す通り、表面から観察した限りでは均一なマイクロスリットが並んでいる様子が見られる。また裏面からもスリットが確認でき、貫通が得られていることが分かる。一方で図 F.5(b) の断面図では深さ方向に沿って不均一な構造が見られる。図の上部がデバイス層表面側で下部がボックス層側であるが、表面から 10 μm 程度までは細いスリットが続いている。ここでは細かな凹凸が見られるが、これはスカロップであり BOSCH プロセスの名残として残るものである。それより深い部分ではスリット幅が急激に広がって、それがスリットの下部まで続いている様子が見られる。スリットが広がっている部分は 2.8 μm にも及び、ヘリウム 3 の表面状態の研究に用いるにはこの問題を解決する必要がある。

スリットの拡幅化の様子がアンダーカットに似ていることから、この問題の原因は BOSCH プロセスのエッチングに対して不活性化が十分でないためと考え、不活性化プロセスの時間を変えて実験を行った。スリットの拡幅化は SOI チップでもバルク Si チップ (通常の Si チップ) でも同様に見られたため、バルク Si チップを用いている。

まず各サイクル毎の不活性化プロセスの時間を一定値で変化させて作成したスリットを比較した。図 F.6(a) では 1 サイクルあたりのエッチング時間を 5 s、不活性化時間を 2 s とした 300 サイクルの BOSCH プロセスで作成したもので、これは図 F.5 と同じ条件である。バルク Si チップでの結果であるが、SOI チップと同様にスリット幅の拡幅化が生じている。図 F.6(b) は不活性化時間を 4 s とした場合で、2.0 μm と 1.5 μm では平滑なスリットが実現しているが、1.0 μm と 0.7 μm の細いスリットでは依然としてスリット幅が内部で広がっている様子が見られる。また不活性化時間を長くしたことによりエッチング自体が阻害され、スリットの深さが短くなっている。これは特に細いスリットで顕著である。

次に不活性化プロセスの時間をサイクルステップ数に比例して変化させてスリット

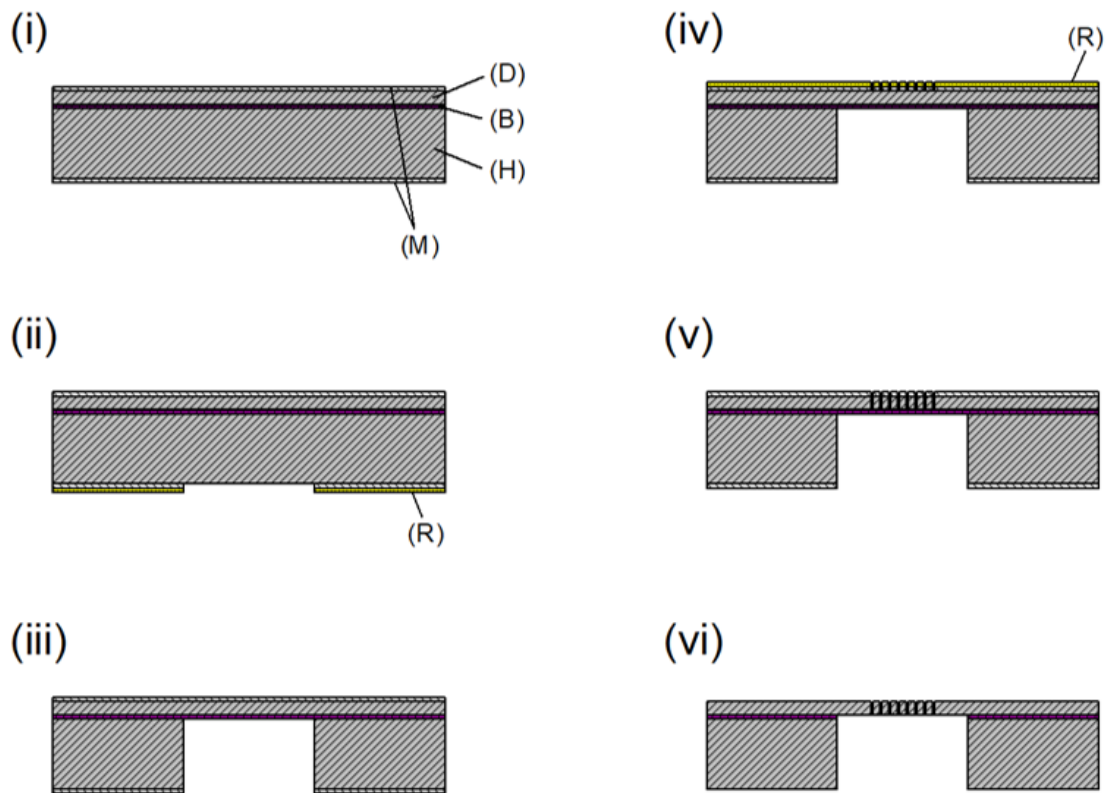


図 F.4. マイクロスリット構造の作成手順の概略図。(i) チップの準備。(ii) ハンドル層の電子線描画と Al(AISi) エッチング。(iii) 深堀 RIE による枠構造の作成。(iv) デバイス層の電子線描画と Al(AISi) エッチング。(v) 深堀 RIE によるマイクロスリットの作成。(vi) ボックス層の SiO_2 と Al(AISi) の除去。(D) は $40\ \mu\text{m}$ デバイス層を表し、(B) $1\ \mu\text{m}$ ボックス層、(H) $510\ \mu\text{m}$ ハンドル層、(M) Al(AISi) マスク、(R) EB レジストである。

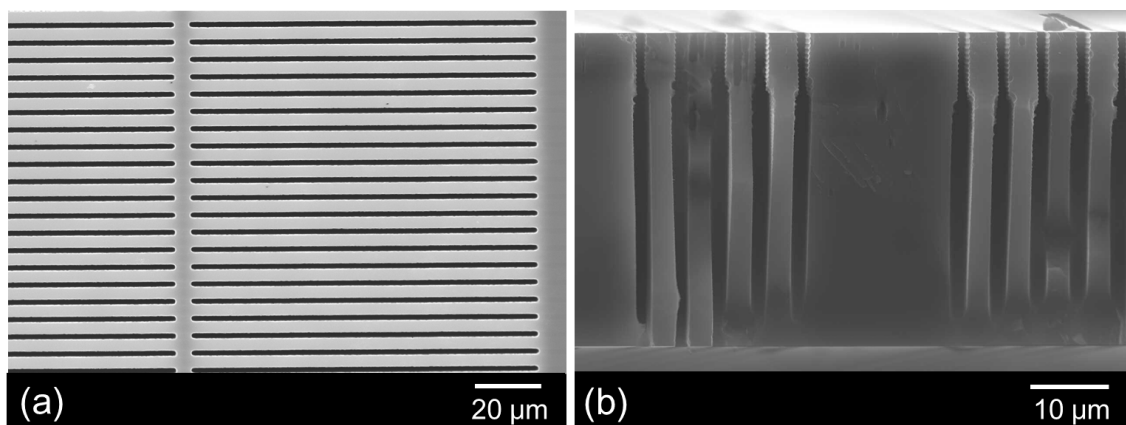


図 F.5. マイクロスリットの (a) 表面と (b) 断面の SEM 画像。

を作成し、過度の不活性化をせずに拡幅化を抑制できる条件を探した。図 F.6(c) は不活性化時間を 2 s から 4 s に変化させたものある。1.5 μm では平滑なスリットが得られているが、1.0 μm と 0.7 μm ではやはりスリットの拡幅化が生じている。図 F.6(d) は不活性化時間を 2 s から 6 s に変化させたものである。0.7 μm では僅かにスリット幅が広がっているが、1.0 μm 以上のスリットではスリット壁は平滑になっており、拡幅化の抑制に成功している。またスリットの深さも図 F.6(b) に比べて深いものが得られている。

図 F.6(e) に示すスリットは全て 1 μm で、不活性化時間を 2 s から 5 s に変化させた場合のものである。スリットの拡幅化は十分抑制されているが、スリットの先端が徐々に細くなっている様子が見られる。これは不活性化時間を長くしたことによりエッチングを阻害しているためと考えられる。図からはスリット表面 (上端) から 40 μm 程度の範囲ではスリット幅は一様に開いているので、貫通のスリットを作成した場合にはこの先細りは問題ではない。また SOI チップの場合はスリットはバルク Si の場合とは異なり下端が存在するので、そこで貫通していればエッチングは一様に進むことが期待される (ボックス層が残っている場合は後述のノッチングと呼ばれる現象が生じ、スリットの内壁を損傷する)。そのため貫通のスリットを作成する際にはより深いスリットでも一様にエッチングが完了することが期待される。

図 F.6(f) には不活性化時間を 2 s から 5 s として作成した 2 μm のマルチスリットの断面を示している。その断面は他のスリットに比べて極めて綺麗である。この理由はスリットのサイズによるものと考えられ、2 μm 以上のスリット幅では深堀 RIE が容易に進むことが分かる。2 μm というスリット幅は超流動ヘリウム 3 に対する擬二次元空間としては少し大きいですが、流れの実験においては 1 μm である必要はなく、十分利用できるスリットである。またコヒーレンス長は温度変化するので、 T_c に近い温度域であれば擬二次元空間としても機能することが期待される。

以上の微細加工実験から、マイクロスリットの作成にはエッチング時間 5 s に対して不活性化時間を 2 s から 5 s にサイクルステップ数に対して線形に変化させれば良いという結果が得られた。またこの実験で得られた傾向から、予想通りスリットの拡幅化はエッチングに対する不活性化の不足によるものと考えられる。幅が広いスリットではプラズマが入り込み易く、はじめの条件でも拡幅化は比較的生じにくい。この拡幅化はスリットが狭いことに起因し、2 μm 以下のサイズで顕著になる。

均一なスリット幅を持つマイクロスリットの作成条件が得られたので、それを SOI の場合に適用した結果が図 F.7(a) である。スリットの壁面が良く見えているが、上端から 20 μm 程度の深さまでスカロップが一様に生成されている様子が見られており、BOSCH プロセスがエッチングと不活性化のバランスを維持しつつ正常に進んでいることを示している。このスカロップは深堀 RIE の特性であるが、理想的にはこ

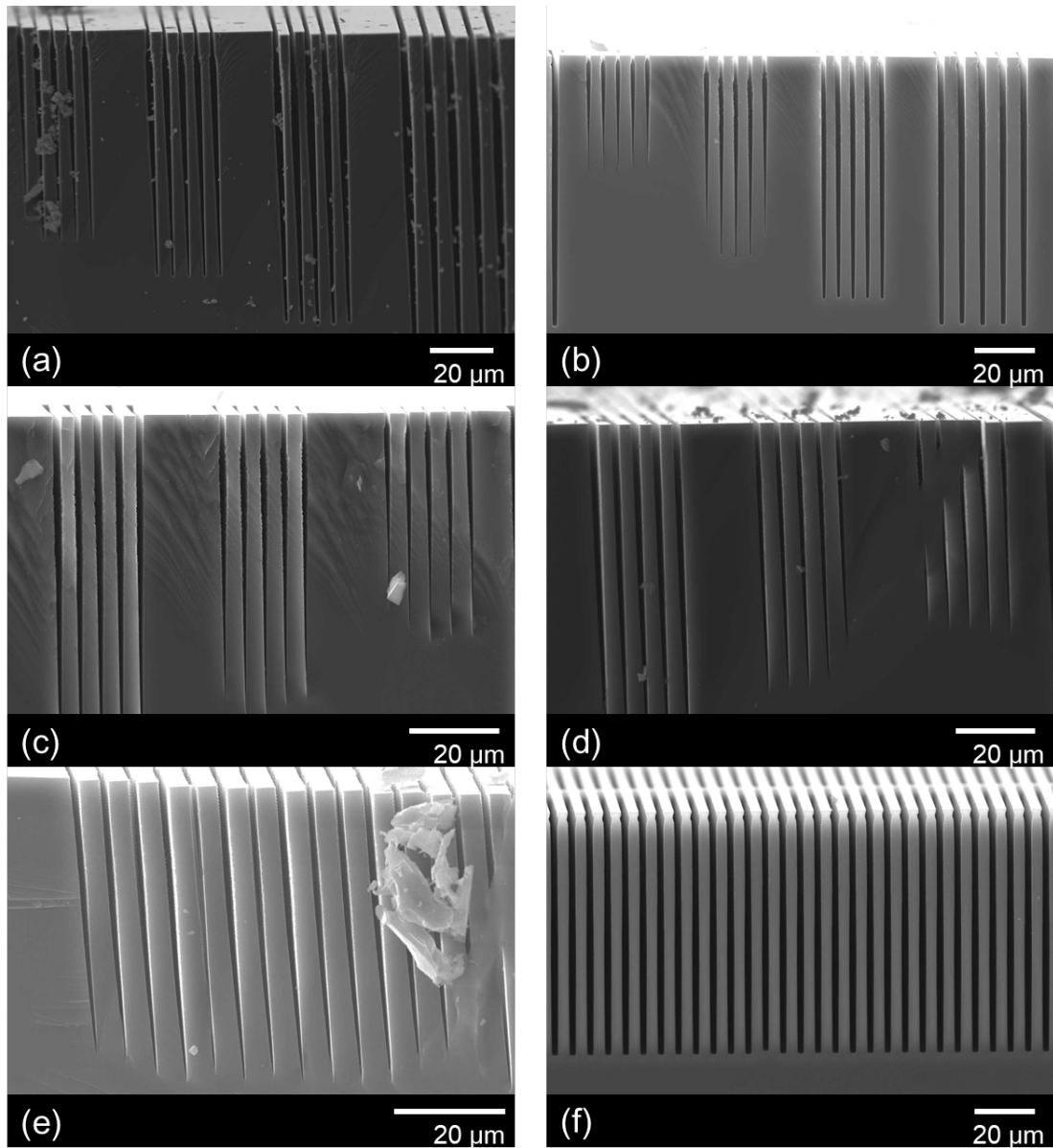


図 F.6. スリットの断面の SEM 画像。不活性化プロセスの時間を (a)2 s で固定、(b)4 s で固定、(c) ステップ数に対して 2 s から 4 s に線形に変化、(d)2 s から 6 s に変化、(e)(f)2 s から 5 s に変化させたものである。(a) と (b) は左から 0.7 μm、1.0 μm、1.5 μm、2.0 μm、(c) と (d) は左から 1.5 μm、1.0 μm、0.7 μm、(e) は 1.0 μm、(f) は 2.0 μm のスリットである。

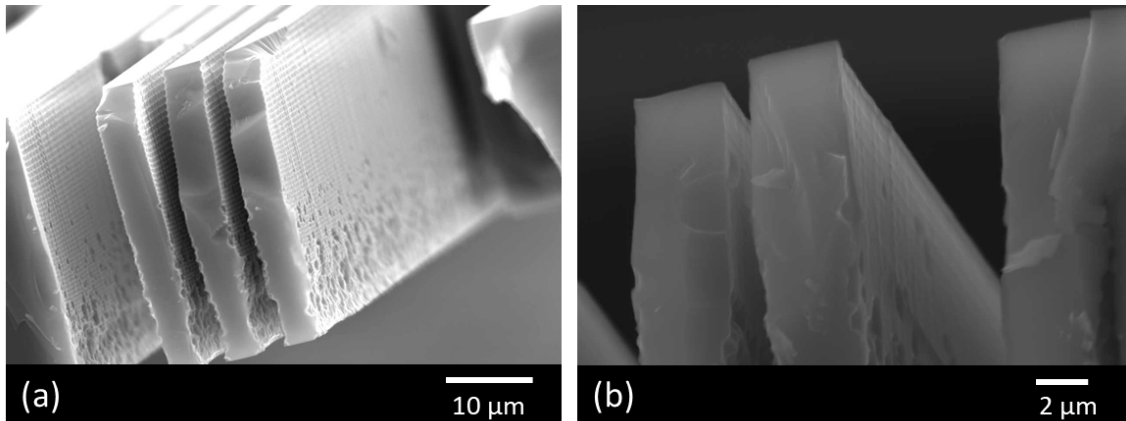


図 F.7. SOI チップを用いて作成したマイクロスリットの断面の SEM 画像。(a) は異方性エッチング前、(b) はエッチング後の画像である。

れも除去する必要がある。そこで我々は異方性エッチングを利用した [85]。KOH や NaOH 等のアルカリ溶液では Si の結晶方位に対してエッチングレートが異なり、特に $\langle 111 \rangle$ 面はエッチングが進みにくいという性質がある。この性質を利用し、マイクロスリット壁面を $\langle 111 \rangle$ 面になるようにしておけば、スリット壁面を残したままスカロップをエッチングにより除去することができる。本実験では比較的に利用し易かった TMAH (Tetramethylammonium Hydroxide) を利用した。60°C の 25% TMAH に 5 分浸漬したマイクロスリットの断面を図 F.7(b) に示す。スリット壁面のスカロップは概ね除去されている。今回は試験的に 5 分間のエッチングを行ったのみであるが、10 分程度のエッチングを行えばスリット壁面は十分に平滑になると期待される。

図 F.7(a) に見られるように、スリットの下端付近ではスリット壁面が激しく損壊している。これはバルク Si では見られない SOI 特有のものであった。この原因はスリット作成時にボックス層の SiO_2 でエッチングプラズマが反射することによるノッチングと呼ばれる現象である。断面を見ると下端でスリット幅が局所的に広がっており、ノッチングの特徴が見られる。この問題は、スリットの深堀 RIE を行う前に気層フッ酸エッチングによってボックス層を除去することで解消することができている。

F.4 ヘリウム 4 の流れ実験の方法

作成したマイクロスリット構造の評価を行うため、超流動ヘリウム 3 の実験に先駆けて液体ヘリウム 4 を用いた流れの実験を行った。実験装置は Packard らが超流動 Josephson 効果を観測した手法と同じものである [21, 86, 87]。この方法では多孔体を透過する液体ヘリウム 4 の微小な質量流を時間に対してつぶさに観測することができ

る。

実験装置の概略図を図 F.8 に示す。実験装置は Helmholtz 共振器と同様のものであるが、ダイアフラムと対向電極は 1 対のみで、対向電極の上部にはダイアフラムの変位を検出するための超伝導パンケーキコイルが設置されている。液体ヘリウム 4 の体積はダイアフラムとマイクロスリットによって 2 つに分断されており、固定電極からダイアフラムに静電引力を与えることで液体ヘリウム 4 はマイクロスリットを通過して内部体積に流れ込む。質量流による体積変化がダイアフラムの変位に対応しており、ダイアフラムの変位を調べることでマイクロスリットにおける流量を知ることができる。ダイアフラムには 50 nm の Al を下地にして 250 nm の Pb を蒸着して膜電極としている。Pb は超伝導金属であり、転移温度 7.2 K 以下では Meissner 効果によって磁場をはじく。この時の磁場の分布は超伝導体表面に対する鏡像法で説明され、そのためパンケーキコイルはダイアフラムとの距離で決まるインダクタンス

$$L_p = \mu n^2 A_d (d - x) \quad (\text{F.15})$$

を持つようになる。ここで μ は透磁率、 n は単位長さあたりのパンケーキコイルの巻き数、 A_d はダイアフラムの面積、 d はダイアフラムとパンケーキコイルの平衡距離、 x はダイアフラムの変位である。 $x \ll d$ であるから、ダイアフラムは近似的に平行に変位するとしている。式 (F.15) のように、ダイアフラムが変位するとパンケーキコイルのインダクタンスが変化することになる。

図 F.8(b) に、パンケーキコイルのインダクタンス変化を検出する超伝導回路の回路図を示している。この回路はヒーター H_1 とコイル L からなる基本的な超伝導永久電流回路である。電源 V のラインを除いて、回路の閉ループはすべて超伝導線を用いて作成する。はじめ超伝導ループが十分低温にあるとき、ループは全て超伝導状態になっている。この状態でヒーター H_1 と H_2 を用いて傍らの超伝導線を加熱して常伝導にすると、超伝導ループは存在しなくなる。この状態で室温部の電源 V から電流を送り込むと、電流は抵抗が存在しないパンケーキコイル C とコイル L を流れる。ヒーター H_1 を切って傍らの超伝導を回復させると、そこでパンケーキコイル C 、コイル L を含む閉回路は超伝導ループになり、コイル L で生じる磁束を保存する。この状態で電源 V から徐々に電流の供給を下げると、それによる磁束変化を補填するようにヒーター H_1 の傍らのラインに電流が流れるようになり、最終的にこの閉ループに超伝導永久電流が閉じ込められる。この状態でヒーター H_2 を切ると傍らのラインの超伝導が回復し、記号的に示している SQUID (Superconducting Quantum Interference Device) (の入力コイル)、ヒーター H_2 とパンケーキコイル C を含む閉回路が超伝導ループになる。SQUID は超伝導 Josephson 接合を 2 つ持つループ回路で、ループを貫く磁束を高感度で検出できる装置である。図中の S は SQUID に入力コイルを含む装

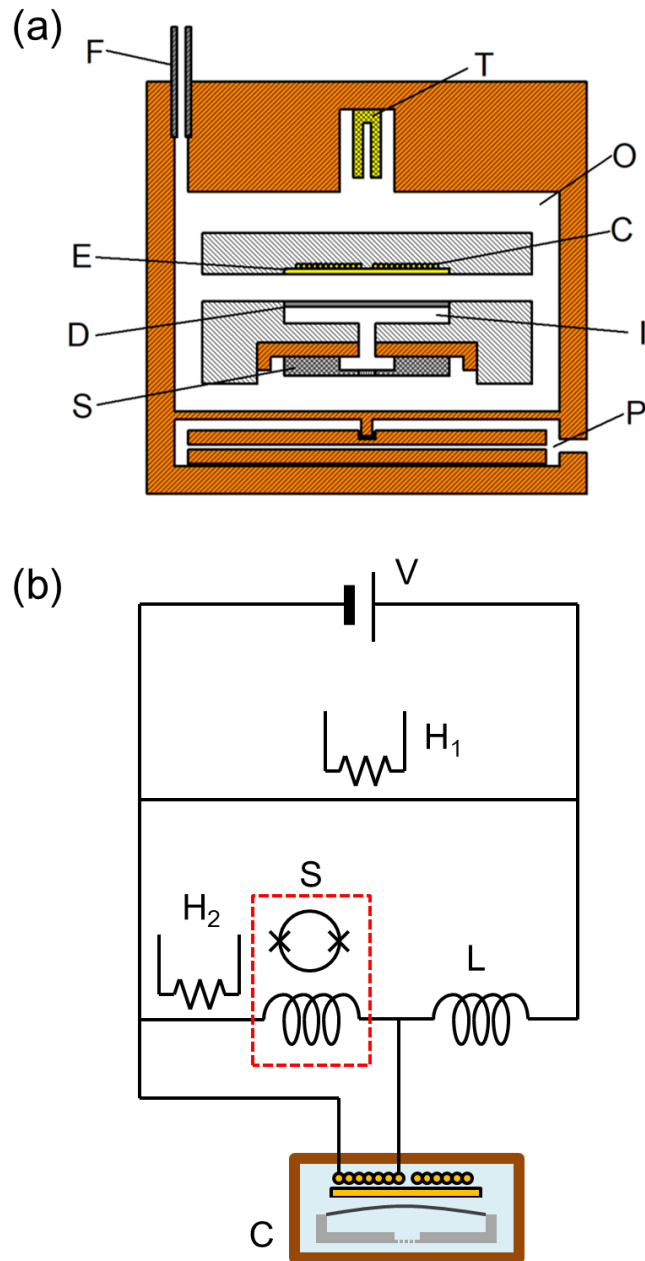


図 F.8. ヘリウム 4 流れ実験装置の概略図。(a) 流れを生じて検出する実験セルの概略図。(b) 流れの信号を高感度で電気信号に変換する超伝導回路の回路図。

置で、入力コイルに入る微小電流を検出する。パンケーキコイルには電流が流れているので、インダクタンスの変化 ΔL_p は SQUID を含む超伝導ループに電流を生み、それが SQUID で検出される。すなわち、SQUID で検出される電流 I は

$$I = \frac{\Delta L_p}{L_p} \frac{I_0}{1 + L_s/L_p + L_s/L} \quad (\text{F.16})$$

と書ける。ここで L_s と L はそれぞれ SQUID 入力コイルと図中のコイル L のインダクタンスであり、 I_0 は電流源から導入した電流である。

実験にはヘリウム 4 冷凍機を使用した (図 F.9)。これは実験セルなどの低温の実験装置群を真空断熱缶中に保持し、液体ヘリウム 4 浴で直接冷却する最も基本的な冷凍機である。実験装置は熱交換ガスとして断熱缶内に導入した少量の気体ヘリウム 4 を介して冷却する。断熱缶外の液体ヘリウム 4 をロータリーポンプで排気し、減圧冷却することで 1.3 K 程度まで冷却することができる。本実験は実験装置の特性上、電気的・機械的ノイズに非常に弱い。ヘリウム 4 冷凍機では無冷媒冷凍機とは異なり寒剤を必要とするが、極めて単純な構造であるためノイズの原因を特定・排除し易いため、本実験ではヘリウム 4 冷凍機を使用する。

実験セルは Helmholtz 共鳴実験と同様、金属を蒸着した厚み $7.5 \mu\text{m}$ のカプトンシートを接着してダイアフラムと固定電極とした。ダイアフラムは Al を下地にして Pb を、固定電極は Cr を下地に Au を蒸着したものを使用する。マイクロスリットは銅で作成した土台に Stycast2850FT を用いて接着し、それを Stycast1266 の構造に接着している。固定電極の上部にはパンケーキコイルを隣接して接着しておく。パンケーキコイルは図 F.10(a) に示すようなもので、Stycast1266 の土台に NbTi 線を巻き付け、Stycast1266 で固めたものである。本実験は性質上、漂遊磁場による磁気ノイズを嫌うため、鉛メッキを施して磁気ノイズを遮断している。メッキ液は株式会社高純度化学研究所の PB-220EF を用いた。鉛は超伝導金属であり、侵入した磁場をピン止めして変動させない性質がある。更に実験セルを μ メタルと呼ばれる高透磁率の物質 (The Mushield 社 CRYO PERM SHIELD) で覆うことで外場を低減し、磁気遮蔽を行っている。実験セルには Helmholtz 共鳴セルと同様に水晶振動子と静電容量型歪み圧力計を搭載している。水晶振動子は一般に振動子の土台部分に磁性体を含むため、水晶振動子をはんだで温めて土台から外し、配線を取り直して Stycast2850FT で固定している。

超伝導回路は NbTi 線を用いて製作した。コイル L とヒーター $H_{1,2}$ は個別に製作する。コイルは銅製のボビンにカプトンテープで絶縁し、電動コイル巻き機を使用して NbTi 線を巻き、ワニスで固定する。ヒーターは銅ボビンにツイストしたマンガン線 9 周と NbTi 線 4 周を巻き付けてワニスで固定する。これらと SQUID、実験セルのパンケーキコイルと室温から来る銅線 (電流ライン) に接続するための NbTi 線を用意し、これらを Nb 箔にスポット溶接 (白谷電子株式会社の UG-1 を使用) することで超伝導を維持しながら接続する。電源ノイズを軽減するため、電流ラインには直列でチョークコイル (コイル L と同様に NbTi 線で作成したもの)、ヒーターのマンガン線には並列にコンデンサを入れておく。これらを磁気遮蔽のため鉛メッキを施した銅製の容器に收容する。また超伝導回路は振動を受けやすいので、配線を箱の内部で固定するためにグリスを配線部に満たして固定しておく。回路と実験セルのピックアップコイ

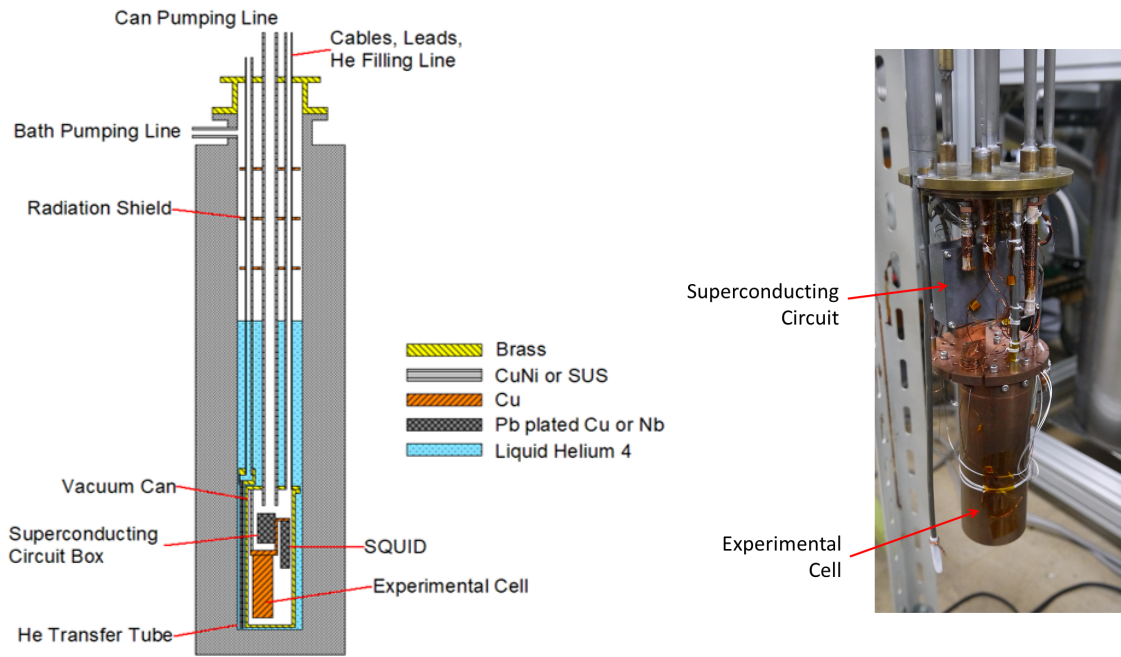
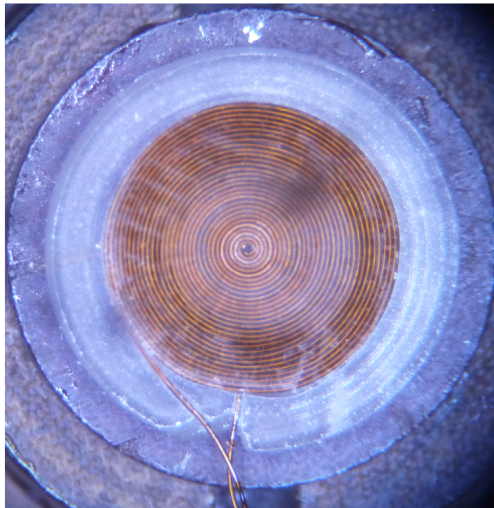


図 F.9. ヘリウム 4 冷凍機の概略図 (左図) と実験装置群の写真 (右図)。

(a)



(b)

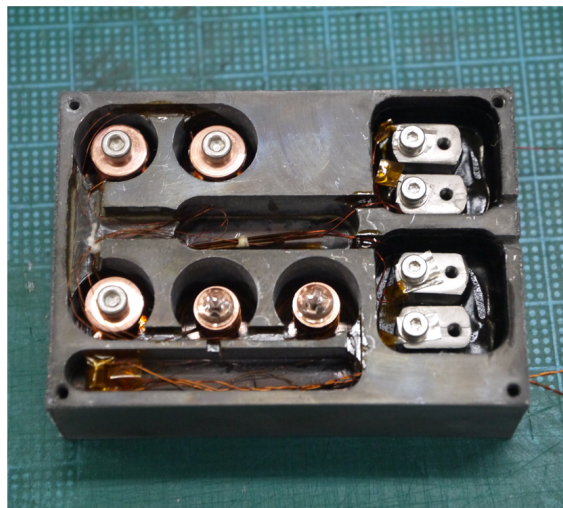


図 F.10. (a) パンケーキコイルの写真と (b) 超伝導コイルの写真。(b) 左上に 1 対のチョークコイル、その下に溶接箇所、コイル L とヒーター $H_{1,2}$ とあり、一番下にコンデンサが入っている。右側は上が SQUID に、下が実験セルのパンケーキコイルに接続する超伝導接合であり、図では SQUID とパンケーキコイルは接続されていない。グリスは溶接箇所とコイルの周囲に満たす。

ルの間の超伝導線は、それぞれの NbTi 線を Nb 箔に溶接してニオブの土台に重ねてねじ止めすることで接続する。電流ラインの銅線とは超音波はんだで NbTi 線を直接はんだ付けし、接合箇所をカプトンテープで絶縁して銅板にワニスで固定して発熱を逃がす。実験セル、超伝導回路の箱と SQUID の外に出る配線ははんだチューブ、あるいはニオブチューブに通して磁気遮蔽する。

SQUID は Magnicon 社の High Performance dc SQUID Electronics を使用する。SQUID はニオブの缶に収納されているが、更に周囲に μ メタルによる磁気シールドを施す。また断熱缶を覆う μ メタルシールドもできるようになっている。更にヘリウム 4 冷凍機のデュワーには珪素鋼板を巻いている。

実験は超伝導回路に 1 A の電流を導入した状態で、固定電極とダイヤフラムの間で電圧を印加することでマイクロスリット中の流れを駆動し、検出する。直流電圧を印加、もしくはその状態で交流電圧をダイヤフラムに印加することで直流・交流のいずれの流れについても実験することができる。直流実験では SQUID の応答電圧をデジタルオシロスコープを用いてモニターし、交流実験ではロックインアンプを用いて信号を検出する。本実験ではそれらの実験を併用して超流動転移を確認した。

F.5 マイクロスリット中ヘリウム 4 流れ実験の結果

固定電極とダイヤフラムの上に直流電圧 100 V を印加した時の SQUID の応答の時間変化を図 F.11 に示す。各データは異なる温度におけるものであり、縦軸方向にシフトして示している。SQUID の応答は入力電流に比例し、従ってダイヤフラムの変位に比例している。各データでは電圧を印加した時間を 0 s に合わせている。電圧の印加に伴いダイヤフラムは変位し始め、減衰振動を伴ってある一定の変位に収束する様子が見られる。これはマイクロスリットの流体力学的なインピーダンスが小さく、液体ヘリウム 4 の流れの散逸が小さいことに起因している。ダイヤフラムに静電引力がかかると、液体ヘリウム 4 はそれによる圧力差によってマイクロスリットを通過して内部体積に流れ込む。この流れが十分速いと、液体ヘリウム 4 の質量流は平衡値を超えて流れ込み、ダイヤフラムは過剰に変位する。そうすると内外の体積の間の圧力差は反転し、液体ヘリウム 4 は逆流し始める。これを、流れがマイクロスリット中で減衰しきるまで繰り返し、最終的には静電引力で決まる平衡値に落ち着く。この振舞いは全温度域で見られているが、温度によってその様子は変化している。 $t = 0$ s における立ち上がりは低温ほど急峻で、振動の振幅は低温ほど大きい。また振動の周期は短くなって、減衰は遅くなっている。

この減衰振動は、質点系の減衰振動と同様に記述できる。すなわち、ダイヤフラム

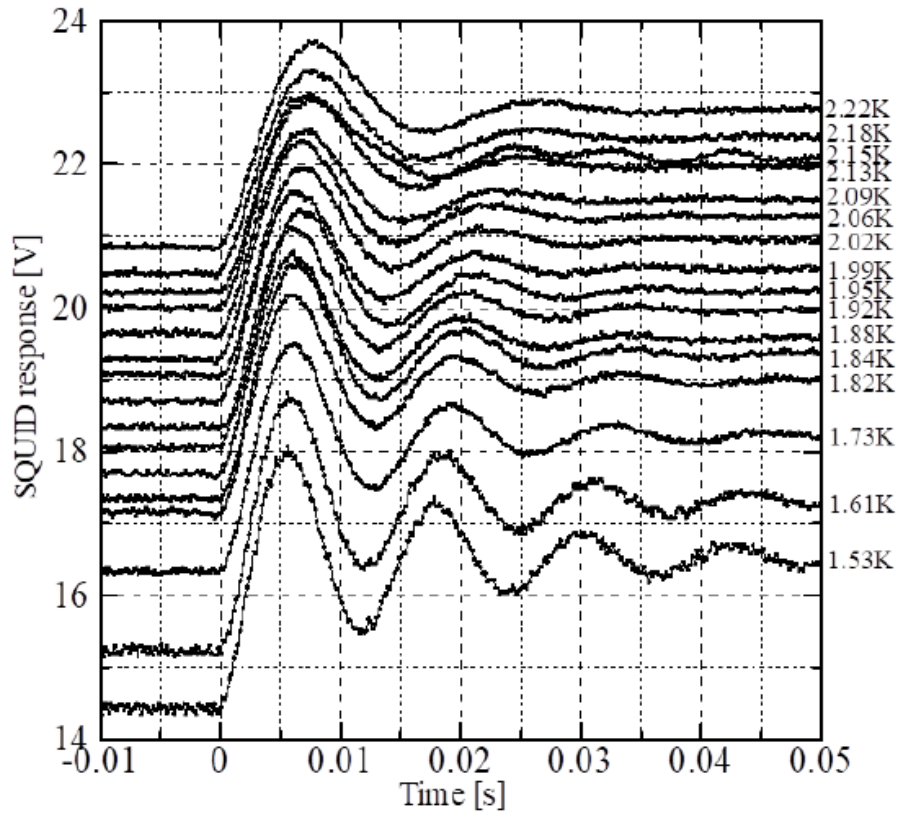


図 F.11. 異なる温度におけるダイアフラムの変位の時間変化。

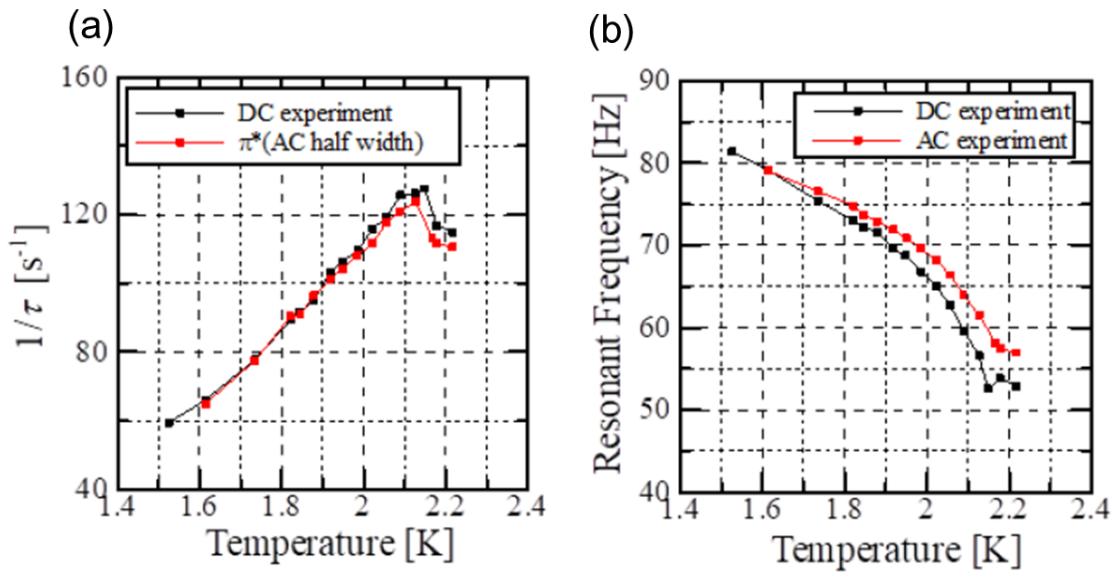


図 F.12. (a) 緩和時間、共鳴の半値幅の逆数と (b) 共鳴周波数の温度依存性。

の変位 $x(t)$ を

$$x(t) = A \exp\left(-\frac{t-t_0}{\tau}\right) \sin(\omega_0(t-t'_0)) + d \quad (\text{F.17})$$

とすると、振舞いを良く記述できる。ここで τ は減衰振動の時定数 (緩和時間)、 ω_0 は振動の角周波数であり、 A 、 d 、 t_0 、 t'_0 は各データ毎に決まる定数である。これより各温度の減衰を特徴付ける緩和時間 τ と共鳴周波数を評価できる。

図 F.12(a) に緩和時間の逆数の温度依存性を示した。赤いプロットは交流実験から得た共鳴の半値幅を π 倍したもので、定量的にも一致している。超流動転移温度は $1 \mu\text{m}$ 程度ではバルク超流動転移温度 T_λ と変わりなく、 2.17 K である。図 F.11(b) では T_λ 以下で低温に向かって減少している様子が見られており、これは超流動転移に伴って質量流の粘性散逸が減少していることを示している。また一方で減衰振動の周波数と交流実験で得た共鳴周波数の温度依存性を示している。わずかなずれはあるものの一致しており、系に特徴的な共鳴の存在によって図 F.11 のような振動をしていることが分かる。この共鳴周波数もまた T_λ で特徴的な変化をしており、低温に向かって共鳴周波数が上昇している。一方でこの共鳴は T_λ 以上でも有限の共鳴周波数を持っている。このことは図 F.11 において T_λ 以上でも減衰振動が見られることから分かる。ダイヤフラムが 1 つのみである本実験装置の場合、ダイヤフラムの変位は流路を通る質量流と一致する。これらの振舞いから T_λ においてマイクロスリット中で液体ヘリウム 4 が超流動転移し、それによって急激に散逸が減少、共鳴周波数が上昇していることが分かる。

図 F.11 に示すような減衰振動は、他の多孔体を用いた過去の実験でも確認していた。その場合ではこの減衰振動は T_λ 以下で急激に成長し、超流動を特徴付ける現象であったが、今回の場合は常流動温度でも同様の減衰振動が観測された。過去の実験の場合、常流動領域においてはダイヤフラムの変位は緩和的な振舞いであった。この緩和する流れは以下のように考えることができる。ダイヤフラムに静電引力がかかると、ダイヤフラムは新たな平衡位置へ向かって変位し始める。この平衡位置までの距離を x と書くと、圧力差 ΔP との間には、常に

$$A_d \Delta P = 8\pi\sigma x \quad (\text{F.18})$$

の関係が成り立っている。ここで A_d はダイヤフラムの面積、 σ はダイヤフラムの張力である。常流動温度において質量流 I_n は

$$I_n = \rho A_d \dot{x} = \frac{\rho}{\eta} \beta \Delta P \quad (\text{F.19})$$

と書ける。ここで ρ は液体ヘリウム 4 の密度、 η は粘性係数であり、 β は構造に起因する定数である。これらから

$$\dot{x} = \frac{8\pi\sigma\beta}{A_d^2} x \quad (\text{F.20})$$

となり、この解は

$$x(t) \propto \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) \quad (\text{F.21})$$

であるから、これは緩和時間

$$\tau = \frac{A_d^2}{8\pi\sigma} \frac{\eta}{\beta} \quad (\text{F.22})$$

で決まる単調に変化する流れになる。

本実験で使用したマイクロスリットは $2 \mu\text{m} \times 100 \mu\text{m} \times 40 \mu\text{m}$ のスリットが 1200 本並列に並んだものであり、スリットは直方体流路であるから

$$\beta = N \frac{wh^3}{12l} \quad (\text{F.23})$$

となる。ここで N 流路の数、 h はスリットの幅、 w はスリットの長辺の幅、 l はスリットの長さである。これらから直流の流れの緩和時間は $\tau = 1.5 \text{ ms}$ となり、減衰振動の周期に比べても十分短い。そのため常流動温度においても減衰振動が生じている。

F.6 まとめと展望

本研究ではトポロジカル超流動ヘリウム 3 の実験的研究のためのマイクロスリット構造を作成し、液体ヘリウム 4 の流れによる評価を行った。深堀 RIE を用いたマイクロスリットの製作においては、表面から数 μm 進んだところから急激にスリット幅が広がってしまうという未知の問題が生じた。我々はこれが BOSCH プロセスのエッチングプロセスと不活性化プロセスのアンバランスに起因すると考え、不活性化時間を変えて製作実験を行い、SEM 像観察により評価を行った。これにより BOSCH プロセスの不活性化時間によるエッチング結果の系統的な違いを調べることができ、またその不活性化時間を固定ではなくサイクルステップに対して変化させることで必要以上にエッチングを阻害することなくスリットを作成できることが分かった。また BOSCH プロセスの結果として残るスカロップは TMAH を用いた異方性エッチングによって除去することができ、SOI チップの場合に生じるノッチングの問題も工程を修正することで解決できている。液体ヘリウム 4 を用いた流れの実験では超流動転移温度 T_λ において流れの散逸の急激な減少が観測され、スリット中の液体の超流動転移を実験的に確認できた。製作したマイクロスリットはトポロジカル超流動ヘリウム 3 の研究に対して新たな実験的手法を提供するもので、今後予定している超音波透過実験、超流動流れ特性の研究をはじめ、様々な実験的研究が期待される。

本研究における液体ヘリウム 4 の流れ実験では、常流動相においても十分に早い緩和を生む質量流が生じており、それが結果として減衰振動を励起していた。このことから、本研究では超流動臨界速度や位相スリップは観測されなかった。超流動相の流

体力学は二流体モデルで説明され、特に超流動転移温度 T_λ 直下では常流動成分が支配的である。 N 個のマイクロスリットが並列に並んだ多重マイクロスリット構造では質量流が N 倍されるため常流動流による緩和が早くなり、超流動が十分加速されず臨界速度に到達しない。液体ヘリウム 4 において臨界速度と位相スリップ現象を観測するためにはマイクロスリットを小さくするか、本数を減らす必要があり、例えば本数を 1 本にしたモノスリットでは常流動の緩和時間は 1.8 s になる。 T_λ 近傍では超流動密度 ρ_s と臨界速度は共に小さくなるため、少なくとも T_c 近傍では位相スリップが生じると期待される。 $\beta \propto h^3$ であったので、 $1 \mu\text{m}$ スリットであれば 14 s と十分長くなり、流れ特性は常流動と超流動で良く識別できるようになると期待される。位相スリップ現象自体は良く調べられているが、Avenel らが用いたスリットは長さがスリット幅に比べて短いため流路として理想的でなく、また形状がいびつであった [88]。この構造的な不均一性は量子渦をピン止めして運動を阻害するなどの影響を及ぼす。本研究で製作したマイクロスリットは壁面が極めて平滑であり、また流路として十分長く理想的であるなど、彼らの実験とは相違点があり、これらが量子渦に及ぼす影響は興味深い研究対象である。また深堀 RIE によるマイクロスリットは長辺の長さが $100 \mu\text{m}$ と彼らのものよりかなり長く、また 1 mm 程度まで伸ばすこともできる。このような流路においては、通常瞬間的に生じるとされる位相スリップの過渡的な現象がみられることが期待される。本研究では測定信号を増強するために多重マイクロスリット構造としていたが、流れの実験に関しては敢えて 1 本のモノスリットを作成すれば、超流動ヘリウム 4 においても量子渦の動力学などの研究に利用できると期待される。

補遺 G 実験装置の設計図

本章では Helmholtz 共鳴実験装置の設計図と製作方法を記す。

ヘリウム容器蓋 図 G.1

Helmholtz 共振器の液体ヘリウム 4 容器の蓋にあたる部品である。 $\phi 1.7$ の 2 つの貫通孔には CuNi 製のキャピラリをはんだ付けし、ヘリウム導入ラインと、音叉型水晶振動子の配線のフィードスルーに使用する。 $\phi 5.3$ の 4 つの貫通孔にはハーメチックシールの同軸コネクタをはんだ付けする。これらに 2 つのダイアフラムと 2 つの固定電極の配線を取る。外周の 8 等配の穴はヘリウム容器 1 にねじ止めしてインジウムシールを行うためのもので、2 等配の M3 のネジ穴はインジウムシールを開封する時に使用する押しネジ用の穴である。

ヘリウム容器 1 図 G.2

Helmholtz 共振器の液体ヘリウム 4 容器の一部である。 $\phi 27$ の外周をヘリウム容器 2 はんだ付けする。ヘリウム容器 2 とヘリウム容器蓋の間でインジウムシールを行うための部品である。

ヘリウム容器 2 図 G.3

Helmholtz 共振器の液体ヘリウム 4 容器の一部で、底面が圧力計ダイアフラムになっている。裏面の $\phi 1$ の突起は内ぐりバイトを低く取り付けて削り残して作成する。製作後に熱処理を行ったのち、ヘリウム容器 1 とはんだ付けする。

ダイアフラムセル 図 G.4

Helmholtz 共振器にあたる構造物である。熱緩和の抑制と絶縁のためにエポキシ樹脂の一種である Stycast1266 を用いて製作する。Stycast1266 は二液混合性の接着剤であるが、使い捨て容器に入れて熱暴走の防止のために水中で冷却しながら固めると構造物として利用できる。 $\phi 8.0$ の穴に検出側のダイアフラムを、蒸着面を内側にして Stycast1266 で接着する。 $\phi 10$ の穴には駆動ダイアフラムリングにあらかじめ接着しておいた駆動側のダイアフラムを、蒸着面を内側にしてリングごと接着する。これらの接着は同時に行い、ダイアフラムを下にして押し付けながら、可能な限り 2 つのダイアフラムの面の高さが揃うようにする。またこのときダイアフラムのタブは $\phi 2.8$ の側面の穴の方へ伸ばしておく。接着後タブを折り曲げて $\phi 2.8$ の穴に導電性スタイキャストを流し込み、芯線を出しておいた同軸線を差し込んで固定する。裏面の $\phi 12$ の穴には MACOR で作成したリングに接着しておいた多孔体試料をはめ込んで接着する。

固定電極セル 図 G.5

Helmholtz 共振器のダイアフラムに対向する 2 つの固定電極を保持するための構造体。絶縁のため Stycast1266 で作成する。2 つの $\phi 8.0$ の穴にはあらかじめ膜電極を接着しておいた 2 つの固定電極台をはめ込んで、固定電極の面の高さが揃うように接着する。このようにすることで、共振器のダイアフラムと位置を合わせることができる。固定電極のタブは側面の 4 mm の溝の方に向けておき、接着後折り曲げて同様に同軸線を取り付ける。

駆動ダイアフラムリングと固定電極台 図 G.6

駆動ダイアフラムと固定電極を接着するための部品で、これらをそれぞれダイアフラムセルと固定電極セルに取り付ける。

圧力計の可動電極と固定電極 図 G.7

静電容量型歪み圧力計を構成する対向電極の対である。可動電極には突起と穴を設けてあり、作成後 Stycast1266 を流し込んで固め、ヘリウム容器 2 の裏面の突起のサイズに合わせてドリルで穴を開け直す。こうすることで電極と実験セルの間の絶縁が取れる。電極の対向する面は紙やすり (4000 番まで) で研磨して鏡面にしておく。2 つの電極には共に側面に穴を開けておき、ここに同軸線の芯線をはんだ付けする。

圧力計底蓋 図 G.8

圧力計固定電極を保持するための部品。内側の底面に Stycast2850FT を塗って同程度の大きさに切った航空便箋を置き、上から Stycast2850FT を塗り直して圧力計固定電極を押し付けながら接着する。ヘリウム容器を加圧した状態でヘリウム容器 2 の裏面の突起に Stycast2850FT を塗って圧力計可動電極をはめ込み、固まる前に圧力計底蓋とはめ合わせて側面を Stycast2850FT で接着する。接着後ヘリウム容器の圧力を抜くと圧力計の電極同士が離れ、コンデンサとして機能するようになる。2 つの電極の同軸線は側面の穴からあらかじめ出して Stycast2850FT で接着しておく。残る 1 つの穴は内外を均圧するための穴である。

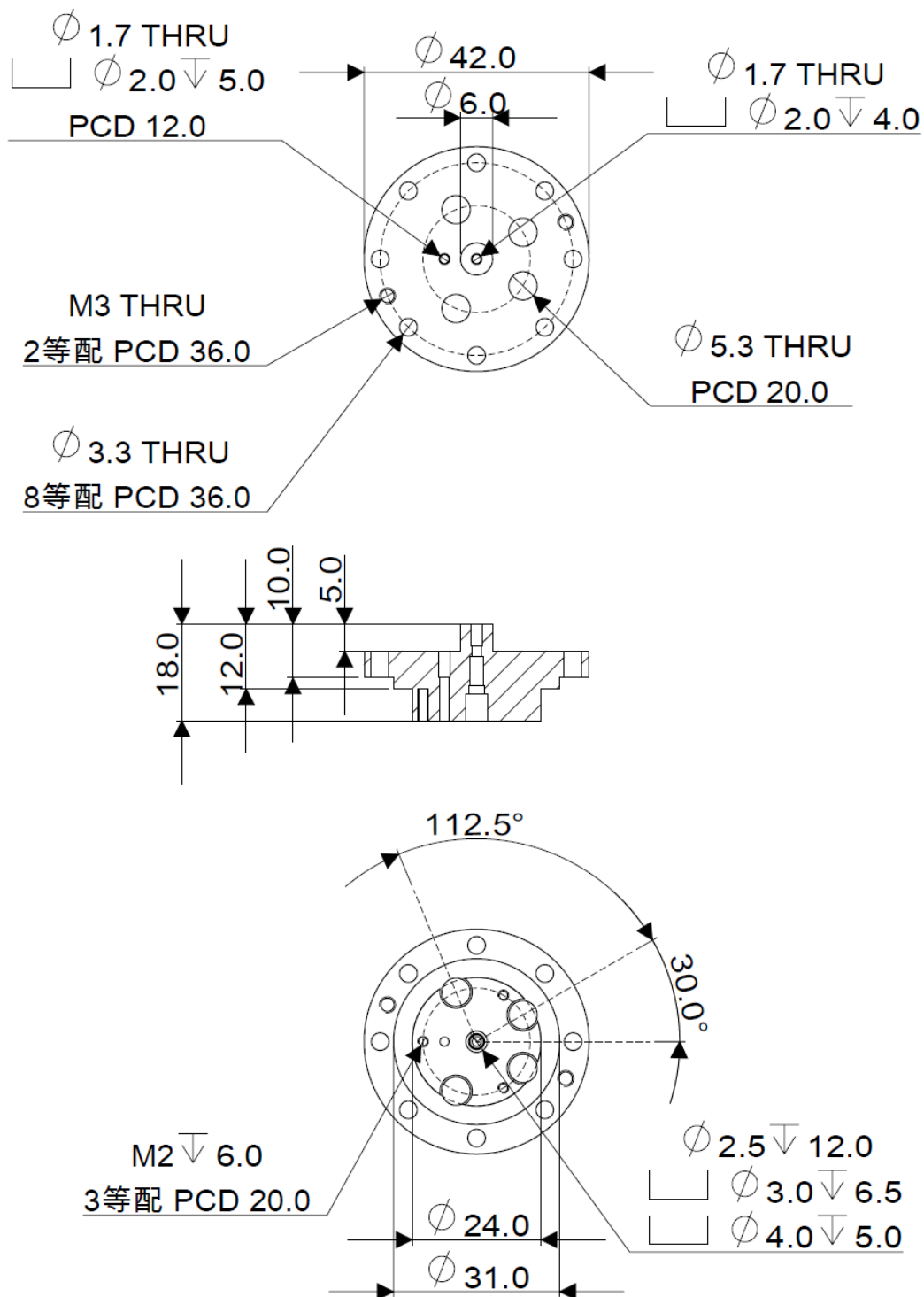


図 G.1. 名称：ヘリウム容器蓋 材料：銅 数量：1

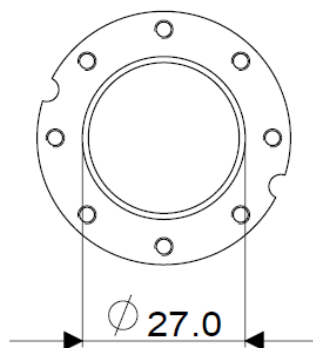
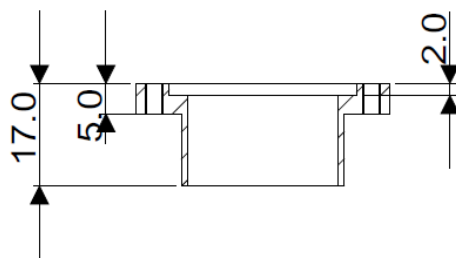
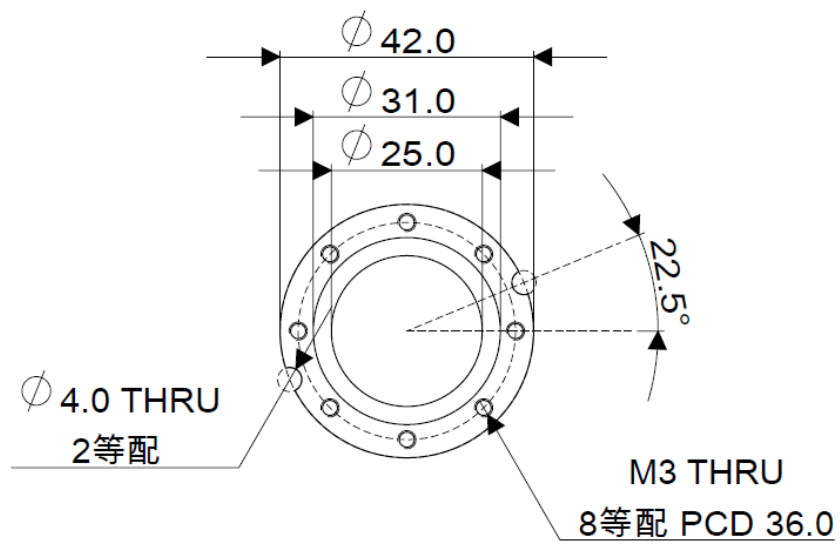


図 G.2. 名称：ヘリウム容器 1 材料：銅 数量：1

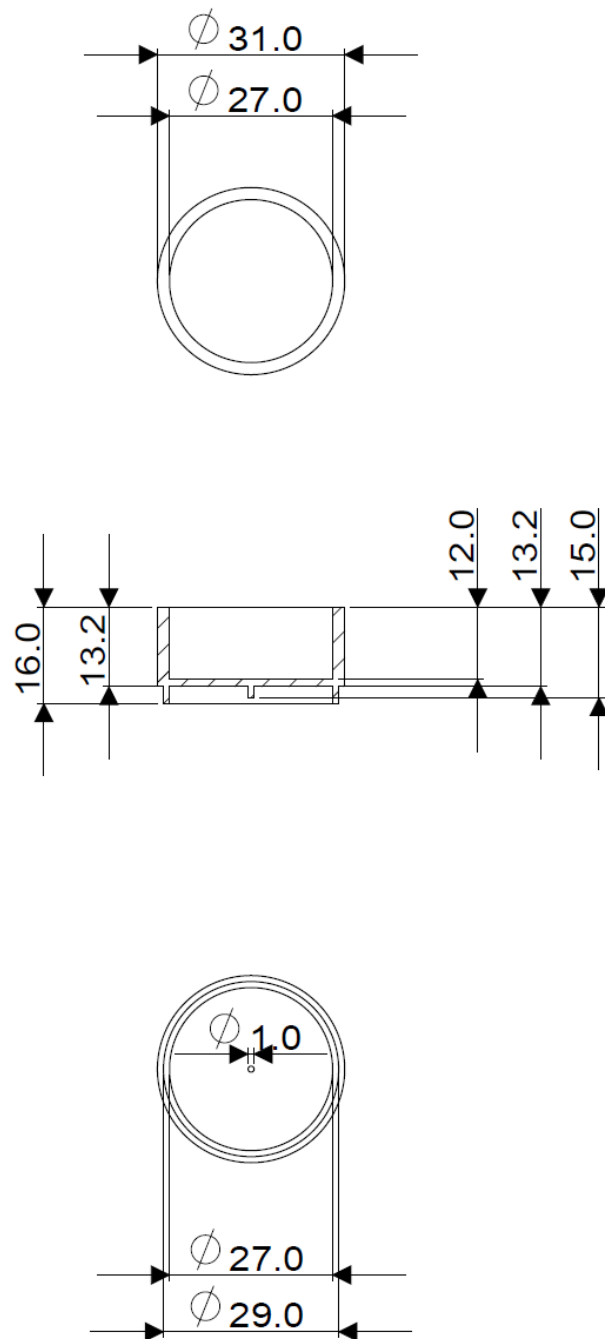


図 G.3. 名称：ヘリウム容器 2 材料：ベリリウム銅 数量：1

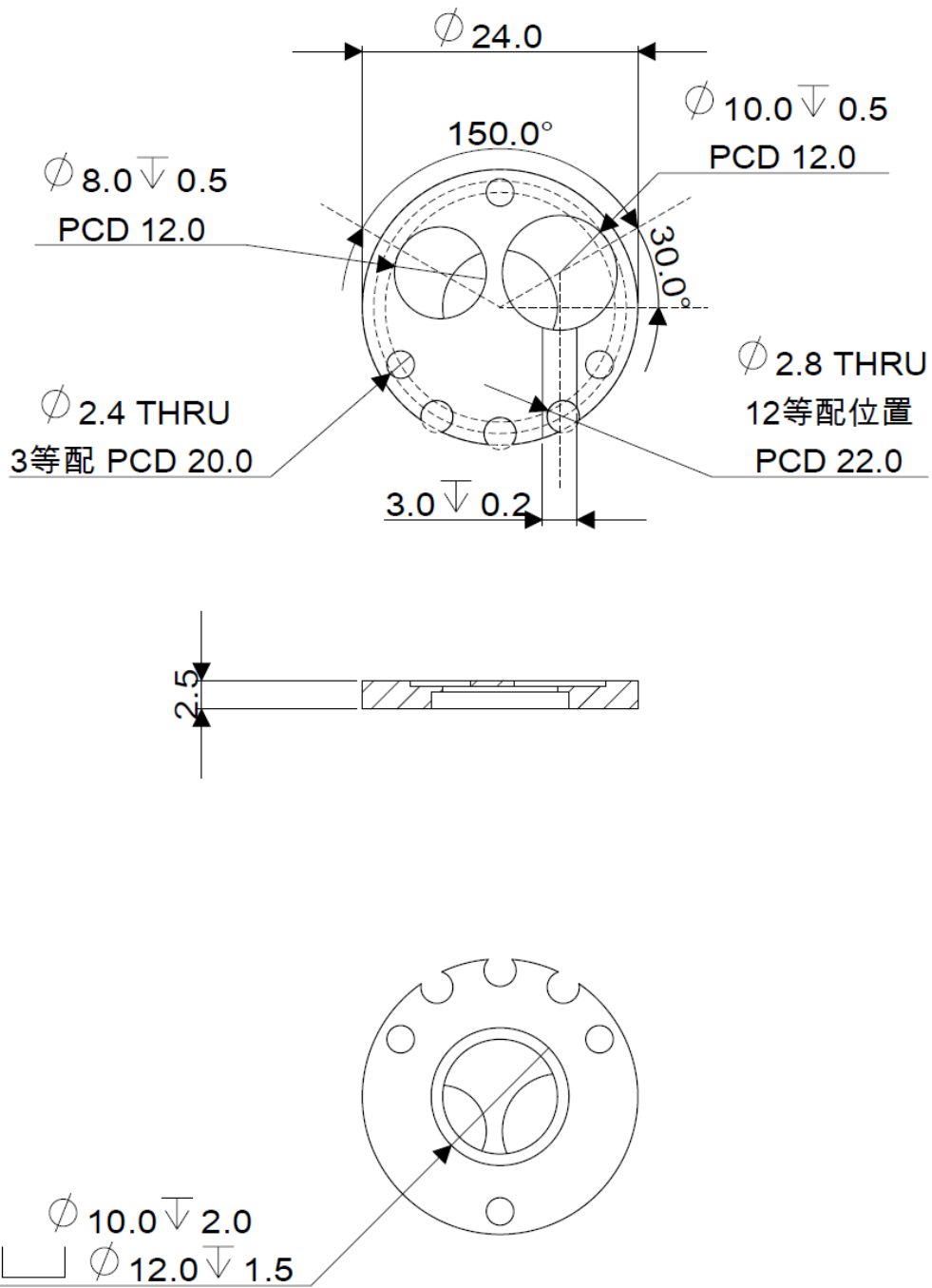


図 G.4. 名称：ダイアフラムセル 材料：Stycast1266 数量：1

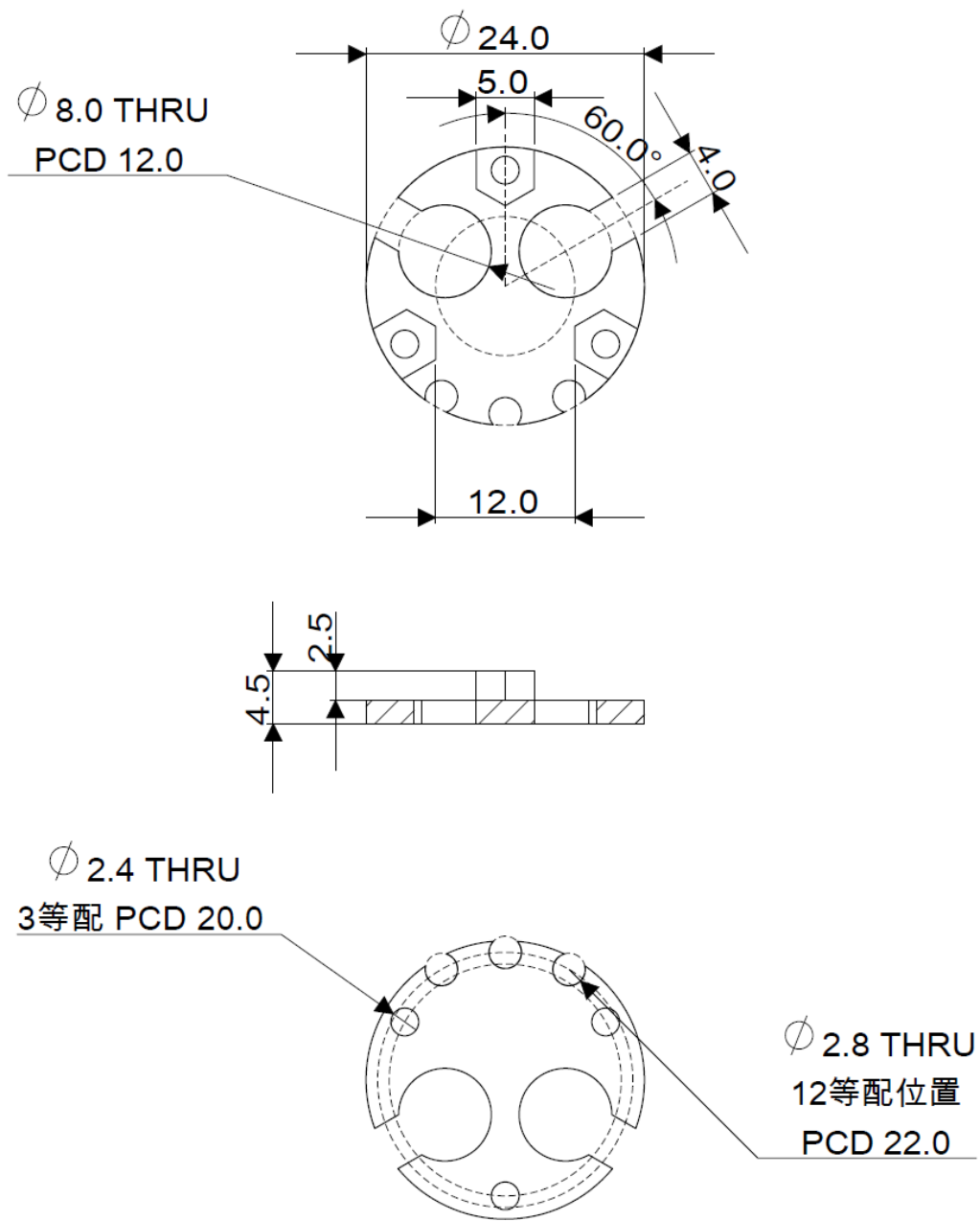


図 G.5. 名称：固定電極セル 材料：Stycast1266 数量：1

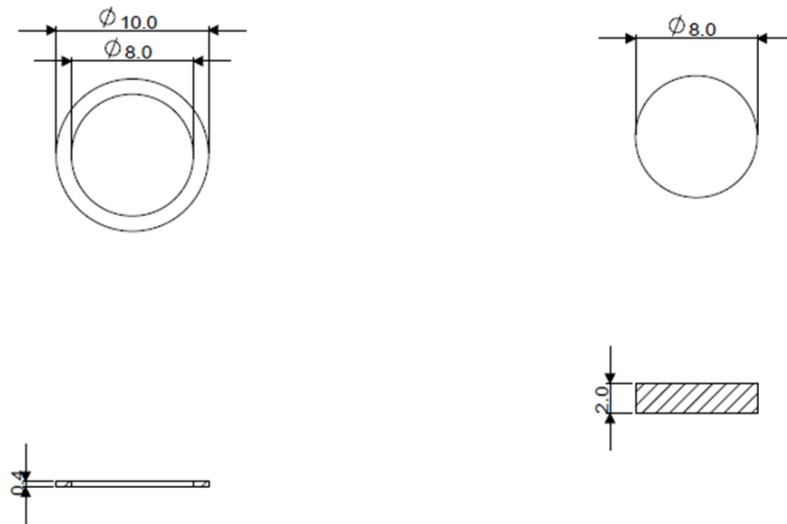


図 G.6. (左) 名称：駆動ダイヤフラムリング 材料：Stycast1266 数量：1
 (右) 名称：固定電極台 材料：Stycast1266 数量：2

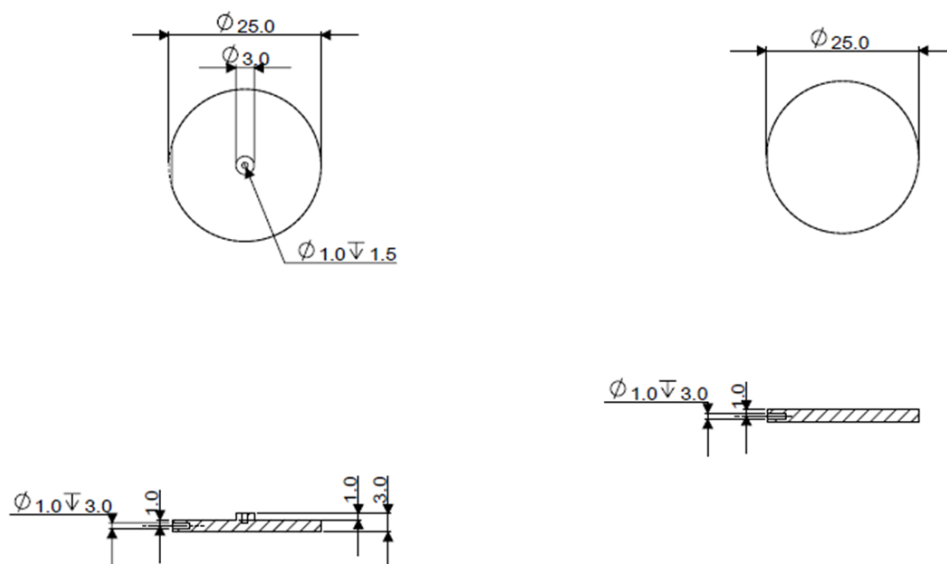


図 G.7. (左) 名称：圧力計可動電極 材料：銅 数量：1
 (右) 名称：圧力計固定電極 材料：銅 数量：1

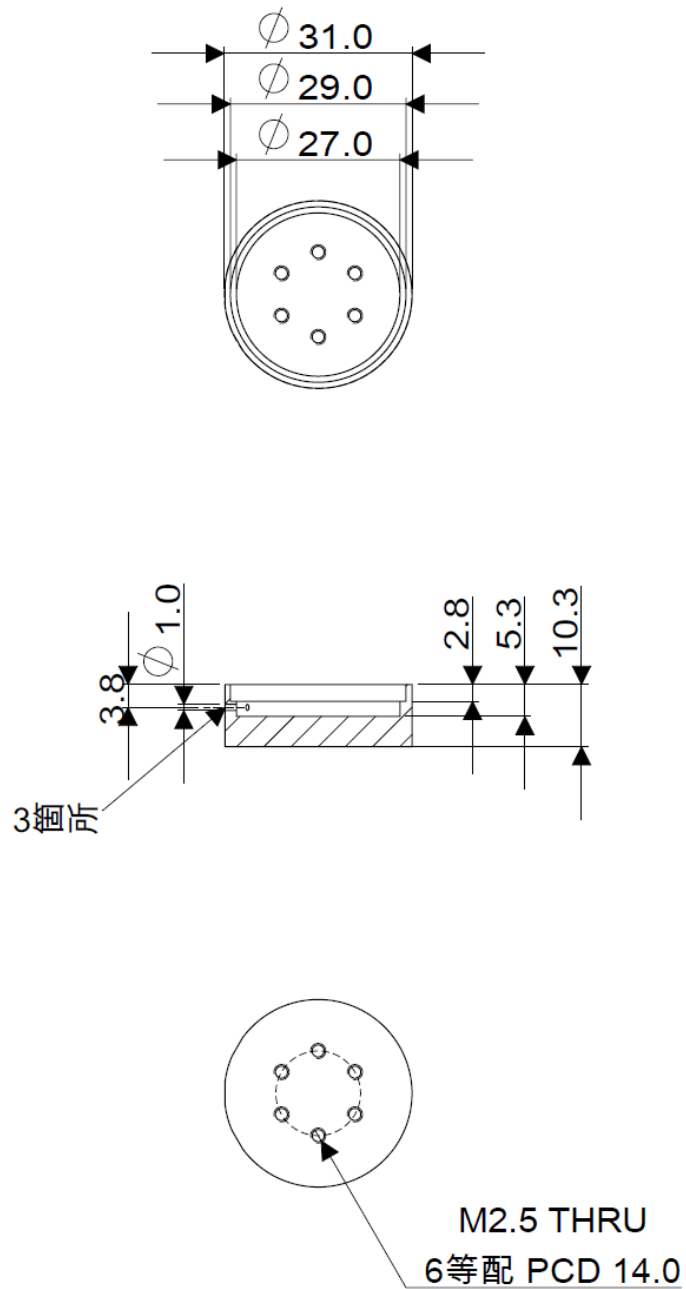


図 G.8. 名称：压力計底蓋 材料：銅 数量：1

参考文献

- [1] S. Sachdev, *Quantum Phase Transitions*, Cambridge University Press (2011)
- [2] S. L. Sondhi, S. M. Girvin, J. P. Carini, and D. Shahar, Continuous quantum phase transitions, *Rev. Mod. Phys.* **69**, 315 (1997)
- [3] B. Keimer, S. A. Kivelson, M. R. Norman, S. Uchida, and J. Zaanen, From quantum matter to high-temperature superconductivity in copper oxides, *Nature* **518**, 179 (2015)
- [4] P. Gegenwart, Q. Si and F. Steglich, Quantum criticality in heavy-fermion metals, *Nature Physics* **4**, 186 (2008)
- [5] P. A. Crowell, F. W. Van Keuls, and J. D. Reppy, Superfluid-Insulator Transition in ^4He Films Adsorbed in Vycor Glass, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 1106 (1995)
- [6] M. P. A. Fisher, P. B. Weichman, G. Grinstein and D. S. Fisher, Boson localization and the superfluid-insulator transition, *Phys. Rev. B* **40**, 546 (1989)
- [7] K. Yamamoto, H. Nakashima, Y. Shibayama, and K. Shirahama, Anomalous Suppression of Superfluidity in ^4He Confined in a Nanoporous Glass, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 075302 (2004)
- [8] J. Taniguchi, Y. Aoki, and M. Suzuki, Superfluidity of liquid ^4He confined to one-dimensional straight nanochannel structures, *Phys. Rev. B* **82**, 104509 (2010)
- [9] A. D. Maestro, M. Boninsegni, and I. Affleck, ^4He Luttinger Liquid in Nanopores, *Phys. Rev. Lett.* **106**, 105303 (2011)
- [10] T. Eggel, M. Oshikawa, and K. Shirahama, Four-dimensional XY quantum critical behavior of ^4He in nanoporous media, *Phys. Rev. B* **84**, 020515(R) (2011)
- [11] T. Eggel, Effects of geometric confinement on strongly correlated superfluids, Thesis, University of Tokyo (2011)
- [12] A. Dutta, G. Aeppli, B. K. Chakrabarti, U. Divakaran, T. F. Rosenbaum, D. Sen *Quantum Phase Transition on Transverse Field Spin Models*, Cambridge University Press (2015)
- [13] J. Bardeen, L. N. Cooper, and J. R. Schrieffer, Theory of Superconductivity, *Phys. Rev.* **108**, 1175 (1957)
- [14] R. J. Donnelly and C. F. Barenghi, The Observed Properties of Liquid Helium at the Saturated Vapor Pressure, *J. Phys. Chem. Ref. Data* **27**, 1217 (1998)
- [15] F. London, *Superfluids*, Dover, New York (1964)
- [16] R. J. Donnelly, J. A. Donnelly, R. H. Hills, Specific heat and dispersion curve for Helium II, *J. Low Temp. Phys.* **44**, 471 (1981)

- [17] P. W. Anderson, Consideration on the Flow of Superfluid Helium, *Rev. Mod. Phys.* **38**, 298 (1966)
- [18] O. Avenel and E. Varoquaux, Observation of Singly Quantized Dissipation Events Obeying the Josephson Frequency Relation in the Critical Flow of Superfluid ^4He through an Aperture, *Phys Rev. Lett.* **55**, 2704 (1985)
- [19] O. Avenel, M. Bernard, S. Burkhart, E. Varoquaux, Autopsy of superflow collapses and multiple phase slips, *Physica B* **210**, 215-233 (1995)
- [20] B. Josephson, Possible new effects in superconductive tunnelling, *Phys. Lett.* **1** 251-253 (1962)
- [21] E. Hoskinson, Y. Sato, I. Harn and R. E. Packard, Transition from phase slips to the Josephson effect in a superfluid ^4He weak link, *Nature Phys.* **2**, 23-26 (2006)
- [22] E. Hoskinson, Superfluid ^4He weak links, Thesis, University of California at Berkeley (2005)
- [23] D. S. Greywall and G. Ahlers, Second-Sound Velocity and Superfluid Density in ^4He under Pressure near T_λ , *Phys. Rev. A* **7**, 2145 (1973)
- [24] G. Ahlers, Critical phenomena at low temperature, *Rev. Mod. Phys.* **52**, 489 (1980)
- [25] M. Barmatz, J. Hahn, J. A. Lipa, and R. V. Duncan, Critical phenomena in microgravity: Past, present, and future, *Rev. Mod. Phys.* **79**, 1 (2007)
- [26] J. C. L. Guillou and J. Zinn-Justin, Critical Exponents for the n-Vector Model in Three Dimensions from Field Theory, *Phys. Rev. Lett.* **39**, 95 (1977)
- [27] C. W. Kiewiet, H. E. Hall and J. D. Reppy, Superfluid Density in Porous Vycor Glass, *Phys. Rev. Lett.* **35**, 1286 (1975)
- [28] M. H. W. Chan, K. I. Blum, S. Q. Murphy, G. K. S. Won, and J. D. Reppy, Disorder and the Superfluid Transition in Liquid ^4He , *Phys. Rev. Lett.* **61**, 1950 (1988)
- [29] G. K. Wong, Superfluid Critical Behavior in the Presence of a Dilute Correlated Impurity, Thesis, Cornell University (1990)
- [30] A. B. Harris, Effect of random defects on the critical behavior of Ising models, *J. Phys. C* **7**, 1671 (1974)
- [31] J. A. Lipa, J. A. Nissen, D. A. Sticker, D. R. Swanson, and T. C. P. Chui, Specific heat of liquid helium in zero gravity very near the lambda point, *Phys. Rev. B* **68**, 174518 (2003)
- [32] J. Yoon and M. H. W. Chan, Superfluid Transition of ^4He in Porous Gold, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 4801 (1997)
- [33] J. Yoon, D. Sergatskov, J. Ma, N. Mulders, and M. H. W. Chan, Superfluid Transition of ^4He in Ultralight Aerogel, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 1461 (1998)

- [34] M. Chan, N. Mulders, and J. Reppy, Helium in aerogel, *Phys. Today* **49** (8), 30 (1996)
- [35] G. K. S. Wong, P. A. Crowell, H. A. Cho, and J. D. Reppy, Superfluid critical behavior in the presence of a dilute correlated impurity, *Phys. Rev. B* **48**, 3858 (1993)
- [36] 高橋和孝、西森秀稔、『相転移・臨界現象とくりこみ群』、丸善出版 (2017)
- [37] K. Yamamoto, Y. Shiabayama and K. Shirahama, Thermodynamic Evidence for Nanoscale Bose-Einstein Condensation in ^4He Confined in Nanoporous Media, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 195301 (2008)
- [38] K. Shirahama, ^4He in Nano-porous Media: Superfluidity and Quantum Phase Transition, *J. Low Temp. Phys.* **146**, 485 (2007)
- [39] K. Shirahama, K. Yamamoto, and Y. Shibayama, Superfluidity of ^4He Confined in Nano-Porous Media, *Low Temp. Phys.* **34**, 273 (2008)
- [40] K. Shirahama, K. Yamamoto, and Y. Shibayama, Localized Bose-Einstein Condensation of ^4He Confined in Nanoporous Media, *J. Phys. Soc. Jpn.* **77**, 111011 (2008)
- [41] S. Miyamoto and Y. Takano, Superfluidity in ^4He adsorbed in porous silica, *Czech J. Phys.* **46**, 137 (1996)
- [42] S. Miyamoto, Torsion Pendulum Studies of ^4He in Nanopores, Thesis, University of Florida (1995)
- [43] O. Plantevin, H. R. Glyde, B. Fåk, J. Bossy, F. Albergamo, N. Mulders and H. Schober, Excitations in liquid ^4He in Geltech silica and localized Bose condensation, *Phys. Rev. B* **65**, 224505 (2002)
- [44] K. Yamamoto, Y. Shibayama, and K. Shirahama, Liquid-Solid Transition and Phase Diagram of ^4He Confined in Nanoporous Glass, *J. Phys. Soc. Jpn.* **77**, 013601 (2007)
- [45] R. W. Simmonds, A. Loshak, A. Marchenkov, S. Backhaus, S. Pereversev, S. Vitale, J. C. Davis, and R. E. Packard, dc Supercurrents from Resonant Mixing of Josephson Oscillations in a ^3Fe Weak Link, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 1247 (1998)
- [46] S. Narayana and Y. Sato, Direct Observation of Dynamical Bifurcation in a Superfluid Josephon Junction, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 205302 (2010)
- [47] X. Rojas and J. P. Davis, Superfluid nanomechanical resonator for quantum nanofluidics, *Phys. Rev. B* **91**, 024503 (2015)
- [48] J. S. Brooks, B. B. Sabo, P. C. Schubert, and W. Zimmertmann, Jr., Helmholtz resonator measurements of the superfluid density of liquid ^4He in submicrometer-

- diameter channels, *Phys. Rev. B* **19**, 4524 (1979)
- [49] A. Tyler, H. A. Cho and J. D. Reppy, Superflow and Dissipation in Porous Glasses, *J. Low Temp. Phys.* **89**, 57 (1992)
- [50] A. Tyler, H. A. Cho and J. D. Reppy, Vortex Flow in Helium-Filled Vycor Glass, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 987 (1994)
- [51] E. P. Barrett, L. G. Joyner, and P. P. Halenda, The Determination of Pore Volume and Area Distribution in Porous Substances. I. Computations from Nitrogen Isotherms, *J. Am. Chem. Soc.* **73**, 373 (1951)
- [52] R. Blaauwgeers, M. Blazkova, M. Človečko, V. B. Eltsov, R. de Graaf, J. Hosio, M. Krusius, D. Schmoranzler, W. Schoepe, L. Skrbek, P. Skyba, R. E. Solntsev, and D. E. Zmeev, *J. Low Temp. Phys.* **146**, 537 (2007)
- [53] G. Y. Gor, D. W. Siderius, C. J. Rasmussen, W. P. Krekelberg, V. K. Shen, and N. Bernstein, Relation between pore size and the compressibility of a confined fluid, *J. Chem. Phys.* **143**, 194506 (2015)
- [54] L. S. Goldner, N. Mulders, and G. Ahlers, Second sound very near T_λ , *J. Low Temp. Phys.* **93**, 131 (1993)
- [55] M. Campostrini, M. Hasenbusch, A. Pelissetto, P. Rossi, and E. Vicari, Critical behavior of the three-dimensional XY universality class, *Phys. Rev. B* **63**, 214503 (2001)
- [56] N. Mulders, R. Mehrotra, L. S. Goldner, and G. Ahlers, Superfluid density from heat pulse propagation near the λ line in ^4He aerogel systems, *Phys. Rev. Lett.* **67**, 695 (1991)
- [57] F. M. Gasparini, M. O. Kimball, K. P. Mooney, and M. Diaz-Avila, Finite-size scaling of ^4He at the superfluid transition, *Rev. Mod. Phys.* **80**, 1195 (2008)
- [58] G. Zassenhaus, A high resolution specific heat measurement near superflow onset in the helium-4/vycor system, Ph. D. Thesis, Cornell University (1999)
- [59] D. F. Brewer, Some thermal, magnetic, and flow properties of adsorbed He and $\text{He}^3\text{-He}^4$ mixtures, *J. Low Temp. Phys.* **3**, 205 (1970)
- [60] E. G. Syskakis, F. Pobell, and H. Ullmaier, Superfluidity of ^4He confined in microscopic bubbles in copper, *Phys. Rev. Lett.* **55**, 2964 (1985)
- [61] 山本恵一、『ナノ多孔体に閉じ込めた ^4He の量子効果』、博士論文、慶應義塾大学 (2008)
- [62] B. D. Josephson, Relation between the superfluid density and order parameter for superfluid He near T_c , *Phys. Lett.* **21**, 608 (1966)
- [63] M. E. Fisher, M. N. Barber, and D. Jasnow, Helicity Modulus, Superfluidity, and

- Scaling in Isotropic Systems, *Phys. Rev. A* **8**, 1111 (1973)
- [64] G. Zassenhaus and J. D. Reppy, Lambda Point in the ^4He -Vycor System: A Test of Hyperuniversality, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 4800 (1999)
- [65] T. Kobayashi, J. Taniguchi, A. Saito, S. Fukazawa, M. Suzuki, and K. Shirahama, Ultrasound Measurements of ^4He Confined in a Nano-porous Glass, *J. Phys. Soc. Jpn.* **79**, 084601 (2010)
- [66] A. Weinrib and B. I. Halperin, Critical phenomena in systems with long-range-correlated quenched disorder, *Phys. Rev. B* **27**, 413 (1983)
- [67] R. B. Robinson, R. Jochemsen, J. D. Reppy, Reduction of Rounding in the ^4He - Vycor Superfluid Transition with Improved Vycor Samples, *Physica B* **194-196**, 569 (1994)
- [68] E. Chow, P. Delsing, and D. B. Haviland, Length-scale dependence of the superconductor to insulator quantum phase transition in one dimension, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 204 (1998)
- [69] D. B. Haviland, K. Anderson, P. Ågren, J. Johansson, V. Schöllmann, and M. Watanabe, Quantum phase transition in one-dimensional Josephson junction arrays, *Physica C* **352**, 55 (2001)
- [70] Y. Mukharsky, A. Penzev, and E. Varoquaux, Low frequency acoustics in solid ^4He at low temperature, *Phys. Rev. B* **80**, 140504(R) (2009)
- [71] Y. Mukharsky, O. Avenel and E. Varoquaux, Search for Supersolidity in ^4He in Low-Frequency Sound Experiments, *J. Low Temp. Phys.* **148**, 689 (2007)
- [72] D. J. Bishop and J. D. Reppy, Study of the superfluid transition in two-dimensional ^4He films, *Phys. Rev. B* **22**, 5171 (1980)
- [73] J. Taniguchi, K. Demura, and M. Suzuki, Dynamical superfluid response of ^4He confined in a nanometer-size channel, *Phys. Rev. B* **88**, 014502 (2013)
- [74] T. Eggel, M. A. Cazalilla, and M. Oshikawa, Dynamical Theory of Superfluidity in One Dimension, *Phys. Rev. Lett.* **107**, 275302 (2011)
- [75] 出村健太、『1次元ナノ多孔体中 ^4He の超流動と比熱』、博士論文、電気通信大学 (2017)
- [76] R. G. Bennett, L. V. Levitin, A. Casey, B. Cowan, J. Parpia and J. Saunders, Superfluid ^3He Confined to a Single 0.6 Micron Slab Stability and Properties of the A-Like Phase Near the Weak Coupling Limit, *J. Low Temp. Phys.* **158**, 163 (2010)
- [77] N. Zhelev, T. S. Abhilash, E. N. Smith, R. G. Bennett, X. Rojas, L. Levitin, J. Saunders and J. M. Parpia, The A-B transition in superfluid helium-3 under confinement in a thin slab geometry, *Nature Communications* **8**, 15963 (2017)

- [78] T. Mizushima and J. A. Sauls, Bosonic Surface States and Acoustic Spectroscopy of Confined Superfluid $^3\text{He-B}$, arXiv:1801.02277
- [79] P. N. Bruzov and V. N. Popov, Superfluidity and Bose excitations in ^3He films, *Zh. Eksp. Teor. Fiz* **80**, 1564 (1981)
- [80] S. Autti, V. V. Dmitriev, J. T. Mäkinen, A. A. Soldatov, G. E. Volovik, A. N. Yudin, V. V. Zavjalov, and V. B. Eltsov, Observation of Half-Quantum Vortices in Topological Superfluid ^3He , *Phys. Rev. Lett.* **117**, 255301 (2016)
- [81] V. V. Dmitriev, A. A. Senin, A. A. Soldatov, and A. N. Yudin, Polar Phase of Superfluid ^3He in Anisotropic Aerogel, *Phys. Rev. Lett.* **115**, 165304 (2015)
- [82] J. Jang, D. G. Ferguson, V. Vakaryuk, R. Budakian, S. B. Chung, P. W. Goldbart, and Y. Maeno, Observation of Half-Hight Magnetization Steps in Sr_2RuO_4 , *Science* **331**, 186 (2011)
- [83] S. Backhaus, S. Pereverzev, R. W. Simmonds, A. Loshak, J. C. Davis and R. E. Packard, Discovery of a metastable π state in a superfluid ^3He weak link, *Nature* **392**, 687 (1998)
- [84] F. Lämer and A. Schilp, Anisotropic etching of silicon substrates - using a polymerisation process in between etching stages to protect lateral edges of the etched shape (1992). Patent number: WO9414187-A, DE4241045-C
- [85] O. Tabata, R. Asahi, H. Funabashi, K. Shimaoka, and S. Sugiyama, Anisotropic etching of silicon in TMAH solutions, *Sensors and Actuators A* **34**, 51 (1992)
- [86] A. A. Joshi, Superfluid ^4He interferometers: construction and experiments, Thesis, University of California, Berkeley (2013)
- [87] 谷智行、『ナノ多孔体中ヘリウム4の超流動抑制とジョセフソン効果』、修士論文、慶應義塾大学 (2015)
- [88] E. Varoquaux, O. Avenel and M. W. Meisel, Phase slippage and vortex nucleation in the critical flow of superfluid ^4He through an orifice, *Can. J. phys.* **65**, 1377 (1987)
- [89] J. S. Brooks and R. J. Donnelly, The calculated thermodynamic properties of superfluid helium-4, *J. Phys. Chem. Ref. Data* **6**, 51 (1977)

謝辞

本研究の遂行にあたり、ご支援・ご協力を賜りました全ての方々に感謝の意を表します。

指導教員である白濱圭也教授には私が学部4年生で研究室に配属されて以来、物性物理学をはじめとする物理学の知識と、実験の遂行にあたり必要な諸技術のご指導を賜りました。実験におきましてはSEMや冷凍機をはじめとする、本研究の遂行に必要な研究設備をご提供下さり、研究の遂行におきましては丁寧な議論を行って頂きました。また研究の重要性や成果の報告における主張の仕方など、研究者として重要な能力をご教示頂きました。研究室において研究活動の機会を得られたこと、興味深い研究題目に携われたこと、そして何より研究の遂行のためにご支援を賜りましたこと、厚く御礼申し上げます。

室蘭工業大学大学院工学研究科の准教授であられる柴山義行氏には、慶應義塾大学において専任講師であられた頃から大変お世話になりました。特に物理学と機械工作技術の修得においてお力をお貸し下さりました。東京大学低温科学研究センターの准教授であられる村川智氏には慶應義塾大学において特任助教であられた頃から大変お世話になりました。特に流れ実験については実験技術をはじめ、実験にあたっての実際的な思想に至るまで多くのことを教えて頂きました。東京大学に移られてからも度々ご相談させて頂き、大変お世話になりました。白濱研究室の助教の永合祐輔氏には実験の解釈について相談させて頂き、また特に微細加工技術をはじめとする様々な実験技術をご教示頂きました。皆様に深く感謝致します。

東京大学大学院総合文化研究科の簗口友紀氏と北海道教育大学旭川校の松元和幸氏には、ナノ多孔体中ヘリウム4の量子相転移の研究の理論的側面について様々な議論を賜りまして、本研究の解釈と意義を深めることができました。また理論研究の立場から本研究に関心を持って頂き、研究の励みとなりました。本研究の遂行にあたり多大なお力添えを頂きましたこと、厚く御礼申し上げます。

東京大学ナノテクノロジー・プラットフォームの三田吉郎准教授には、マイクロスリットの微細加工にあたり研究設備を使用させて頂き、また具体的な加工プロセスの相談やウェハの手配に至るまでお手伝い頂きました。技術職員のEric Lebrasseur氏には電子線描画とエッチングを含む主な作業全般を、水島彩子氏には精密研磨をはじめとする様々な装置の使用法と微細加工技術をご指導頂きました。ご多忙の中お時間を頂き、丁寧にご支援を賜りましたこと御礼申し上げます。

慶應義塾大学物理情報工学科の伊藤公平教授と山田快斗君とは共に金属アシスト化学エッチングなどのエッチング実験を行わせて頂きました。実験の際には研究室の実験設備をお貸し下さり、また親身にアドバイスを頂きましてありがとうございました。山口大学の本多謙介教授にはナノ多孔体試料としてポーラスアルミナをご提供頂きま

した。我々の研究に向けて小孔径の試料を作成するなど、困難な実験を引き受けて下さりましてありがとうございました。

日本物理学会領域6超低温研究に携わられる研究者の皆様、量子液体固体分野の研究に携わられる研究者の皆様には学会・研究会をはじめとし、様々な交流の中でご指導を賜りました。慶應義塾大学物理学科の教員の皆様には物理学の授業をはじめ、本研究の遂行にあたってご鞭撻を賜りました。皆様に深く御礼申し上げます。

白濱研究室の学生の皆様には、公私共に支えて頂きましてありがとうございました。大澤康平氏、田中智也氏には直属の先輩ということもあり、面倒を見て頂きましてありがとうございました。また立木智也氏も博士課程に進学した先輩として頼りにさせて頂き、励みになりました。和田龍馬君と海谷航平君は私の博士課程研究の一環として研究に励んで下さり、大変助けになった点も多くありました。超流動ヘリウム3のトポロジカル物性研究の開拓という困難な研究を共に行えたこと、大きな支えとなってくれてありがとうございました。研究室の卒業生の皆様、在籍中の皆様にも日ごろから大変お世話になりました。皆様に御礼申し上げます。

最後になりましたが、今日に至るまで私の研究活動を支援して下さった親族の皆様、友人の皆様をはじめ、多くの方々に感謝の意を表します。