

1次元ナノ多孔体中⁴Heの超流動と比熱

出村健太

電気通信大学大学院 情報理工学研究科
博士(理学)の学位申請論文

2017年3月

1次元ナノ多孔体中⁴Heの超流動と比熱

博士論文審査委員会

主査 鈴木 勝 教授

委員 阿部 浩二 教授

委員 尾関 之康 教授

委員 斎藤 弘樹 教授

委員 小久保 伸人 准教授

委員 松林 和幸 准教授

著作権所有者

出村健太

2017年

Superfluidity and Heat Capacity of Helium-4 confined in 1D Nano-porous medium

DEMURA Kenta

Abstract

Superfluidity in one dimension (1D) is attracting the attention of the condensed matter physics community. Recently, for liquid ^4He confined in 1D nano-porous media, a rapid growth of the superfluid response accompanied by a broad dissipation peak was observed. In addition, it was found that a heat capacity anomaly takes place much higher temperature than the rapid growth.

To clarify the physical properties of liquid ^4He confined in 1D nano-porous media, I carried out twofold torsional oscillator experiments for a 3 nm-channel sample and heat capacity experiments for a 2 nm-channel sample. From these experiments, the new findings are as follows: a) the superfluid response and the dissipation peak of the pressurized liquid ^4He shifts to the low-temperature side by a reduction in the measuring frequency, and the shift was slightly enhanced by the application of pressure. b) The superfluid response and the dissipation peak vary continuously from thin films to pressurized liquid ^4He . In contrast to the pressurized liquid ^4He , their frequency dependence is obviously small. c) By introducing ^3He , the superfluid response and the dissipation peak shift to the low-temperature side. d) A heat capacity anomaly for the 2 nm-channel sample takes place much lower temperature than that of the 3 nm-channel sample, and its magnitude is significantly small.

It is found that the superfluid response of liquid ^4He confined in a 1D nanometer-size channel is dynamical phenomenon, and the observed frequency dependence can be explained by the Tomonaga-Luttinger liquid model. On the other hand, the heat capacity anomaly is strongly suppressed as the channel diameter decreases. These features suggest that the physical properties of liquid ^4He are strongly affected by channel diameter.

1次元ナノ多孔体中⁴Heの超流動と比熱

出村健太

概要

低次元系の液体⁴Heの超流動の振舞いは物性物理の大きな興味のひとつである。最近、細孔径がおよそ3 nmの1次元細孔に閉じ込めた擬1次元系の液体⁴Heの超流動密度と熱容量が観測された。その結果、転移温度はバルク液体⁴Heの転移温度から大きく低下し、また機械的応答に対して大きな散逸ピークを伴うことが報告された。また、細孔中液体⁴Heの熱容量は、バルクより低温でブロードな異常があることがわかった。

本研究の目的は、1次元細孔中液体⁴Heに関して(1)特徴的な散逸ピークを伴う超流動転移の性質を明らかにすること、(2)細孔中の液体⁴Heの熱容量について細孔径依存性を明らかにすること、である。具体的には(1)については、散逸ピークの測定周波数依存性を調べた。研究では、①細孔径3 nmの細孔内に吸着薄膜から加圧下液体⁴Heに至るまで、②加圧下液体⁴He、③微量な³Heを導入した³He-⁴He混合液体についての3つの実験条件で測定を行った。(2)については、細孔径3 nmより小さい細孔径2 nmの1次元細孔に閉じ込めた液体⁴Heの熱容量測定を行った。本論文は7章からなる。

第1章では、本研究に先立ち制限空間中⁴Heの研究の必要性について述べる。特に、1次元ナノ多孔体中⁴Heの超流動と比熱は、低次元系の物性の理解に大きく貢献すると考えられ重要である。

第2章では、本研究に関連する先行研究を紹介する。まず、バルク⁴Heの一般的性質と超流動と比熱について説明する。次に、制限空間に閉じこめた⁴Heの研究を紹介する。多孔質ガラス中⁴Heの超流動はバルクよりも低温に抑制され、その抑制の大きさは細孔径に依存することが報告されている。多孔質ガラスの特徴は、3次元ネットワークを持つこと、細孔径に分布があることである。最後に、1次元ナノ多孔体中ヘリウムの先行研究を述べる。最近、細孔径分布が小さく細孔間の接続がない1次元細孔FSM中⁴Heの超流動が観測され、その理論研究も報告されている。

第3章では、前半に本研究で用いる1次元細孔FSMについて述べる。本研究では、細孔径の異なる試料を用いる。2つの試料に対し、窒素吸着圧力測定を行った結果より、細孔径が異なることを確認し、BET法を用いた解析により表面積評価を行った。後半では、超流動密度測定に用いた2重連成ねじれ振り子法と熱容量測定法を説明する。ねじれ振り子はロッドとおもりで構成され、ロッドのねじれ振動に共振周波数をもつ。おもり内部に⁴Heがあると、超流動密度変化は共振

周波数変化として観測される。本研究では、ロッドと実験セルを兼ねたおもりの中間にダミーのおもりを配置することで、2つの共振周波数をもつ2重連成ねじれ振り子を用いた。また、熱容量測定セルにはヒーターと温度計を取り付け、熱パルスの緩和を計測することで精密に熱容量を測定した。セルは極低温下で液体 ^4He の圧力を計測する機構も備えている。

第4章では、細孔径3 nmの1次元細孔FSMでの純粋な ^4He の超流動密度の測定結果を説明し、議論する。章前半では、加圧下の液体 ^4He について説明した。加圧下の液体 ^4He の散逸ピークは測定周波数が低周波では低温へ移動すること、高圧では周波数依存が大きくなること明らかになった。後半では細孔内の低密度 ^4He について説明した。 ^4He ははじめ細孔壁面に吸着し、ある導入量では円筒状の薄膜液体が形成されると考えられる。さらに ^4He を導入すると、薄膜から細孔内が液体で満たされ、最終的には飽和蒸気圧下の液体 ^4He で細孔内が満たされる。測定の結果、円筒状の薄膜液体と考えられる条件でも、加圧下液体で満たされた条件と同様の超流動応答が観測された。また、飽和蒸気圧下より低密度の液体でも周波数依存あることがわかり、依存の大きさは加圧下液体よりも小さいことが明らかになった。これらの測定結果について Tomonaga-Luttinger(TL) 模型に基づく理論研究と比較した。

第5章では、細孔径3 nmの1次元細孔FSM中に微量な ^3He を導入した ^3He - ^4He 混合液体の超流動応答と測定結果を説明し、議論する。 ^3He 濃度が2 at%, 4 at%の混合液体と純粋な ^4He について、超流動の観測される温度と周波数依存の大きさを比較した。超流動は ^3He 濃度に比例して低温へ移動し、移動量はバルク液体や他の多孔質ガラスの実験結果と同程度であることが明らかになった。また、周波数依存の ^3He 濃度による差異は観測されなかった。これらの測定結果について TL 模型に基づく理論研究と比較した。

第6章では、細孔径2 nmの1次元細孔FSMの液体 ^4He の熱容量の測定結果を説明し、議論する。セル内には細孔外に μm からnmオーダーの様々なサイズの空間が存在することがわかった。細孔内 ^4He の熱容量の異常を観測し、細孔径3 nmの異常温度より低温であることを明らかにした。また、細孔径2 nmの異常温度では超流動密度の立ち上がりがあることがわかり、臨界指数はバルク ^4He や多孔質ガラス中 ^4He とは異なることが明らかになった。

以上から、1次元細孔中の ^4He の超流動応答は観測周波数に依存しバルクとは異なる機構であり、2次元薄膜 ^4He の超流動と比較して、細孔径3 nmの1次元細孔中超流動応答の観測周波数は一桁程度大きく、細孔中超流動応答は1元系特有の振舞である可能性がある。

第7章を全体のまとめとした。

目次

第1章	序論	1
第2章	これまでに行われた研究	3
2.1	^4He の一般的性質	3
2.1.1	バルク液体 ^4He の性質と超流動	3
2.1.2	Bose-Einstein凝縮と ^4He	5
2.1.3	2流体模型	5
2.2	3次元細孔に閉じこめた ^4He の先行研究	7
2.2.1	^4He の超流動転移におけるサイズ効果	7
2.2.2	多孔質Vycorガラス中の超流動	8
2.2.3	多孔質Gelsilガラス中の超流動	12
2.3	1次元ナノ多孔体FSM中の ^4He の研究	18
2.3.1	薄膜状態の超流動応答	19
2.3.2	加圧液体状態の超流動応答	19
2.3.3	異方的XYモデルによるヘリシティモジュラスの計算	22
2.3.4	朝永・Luttinger液体モデルに基づく1次元超流動の動的理論	24
2.3.5	熱容量測定	26
2.3.6	細孔中の固化	32
第3章	実験方法	35
3.1	1次元ナノ多孔体FSM	35
3.1.1	1次元ナノ多孔体FSMの概要	35
3.1.2	ペレットの作製	37
3.1.3	表面積評価	38
3.2	ねじれ振子法による超流動密度の測定	42
3.2.1	ねじれ振子の共振周波数	43
3.2.2	ねじれ振子による超流動密度の測定	45
3.2.3	2重連成ねじれ振子	47
3.3	熱容量測定・圧力測定	52
3.3.1	極低温圧力計の原理	52

3.3.2	実験セルとセットアップ	53
3.3.3	熱容量測定の概要	59
3.4	極低温の生成	63
3.5	試料ガスの導入	66
第4章	純粋な ^4He の超流動応答	69
4.1	加圧下液体について	69
4.1.1	各圧力の周波数変化と Q^{-1} の温度依存性	69
4.1.2	温度圧力相図	73
4.1.3	理論計算との比較	73
4.2	薄膜から加圧下液体に至るまで	74
4.2.1	^4He 吸着圧力測定	74
4.2.2	薄膜から飽和蒸気圧に至る間の超流動応答	75
4.2.3	薄膜から加圧下液体への連続性	80
第5章	希薄な ^3He-^4He の超流動応答	85
5.1	周波数変化と Q^{-1} の ^3He 濃度依存性	85
5.2	周波数変化と Q^{-1} の周波数依存性	88
第6章	細孔中 ^4He の熱容量	93
6.1	FSM12 ペレット内 ^4He の全熱容量	93
6.2	FSM12 細孔内液体 ^4He の熱容量	99
6.3	FSM12 と FSM16 細孔内液体 ^4He の超流動	102
第7章	まとめ	107
付録A	熱容量セル設計図	111
付録B	FSM パウダー間の希薄な ^3He - ^4He における第2音波の共鳴	117
付録C	2重連成ねじれ振り子の両モードの感度比の評価	121
参考文献		123

第1章 序論

制限された空間中 ^4He の研究が盛んに行われてきた。制限空間を実現するために、直径が微小サイズの多孔質ガラス中や微粉末の間の空間に液体 ^4He を閉じこめて実験を行う手法で、バルク ^4He の超流動転移と異なる振る舞いが報告された。その中で、Reppy らによる平均孔径数 nm 程度の細孔を有する多孔質 Vycor ガラス中液体 ^4He の研究を代表例として挙げられる。彼らは、液体 ^4He の超流動転移は低温へ移動するものの、臨界指数はバルク ^4He と同様で、3次元性は残っていると主張した。

最近では、Vycor よりさらに孔径が細く、複雑な接続がない特徴をもつ1次元ナノ多孔体「FSM」中に閉じこめた液体 ^4He の研究がWadaらによって行われた。彼らの報告では、FSM中に吸着した円筒薄膜 ^4He で、散逸ピークを伴う超流動が観測されることがわかった。彼らはドブロイ波長と細孔径が同程度であることから「1次元状態」にあると主張した。さらに、TaniguchiらはFSM中加圧下液体 ^4He でも同様の特徴を持つ超流動が観測された。

しかし、一方でMarmin-Wagner則のように1次元系では相転移は起こらないとされ、この“超流動応答”はどのような機構で観測されるのかを明らかにすることは重要である。

本研究では、低温で観測される超流動応答の性質を調べるため、周波数依存するかを明らかにする事を目的とし、2つの周波数で超流動密度を観測することができる2重連成ねじれ振り子実験を行った。また、超流動応答の立ち上がりには比熱の異常が観測されるのかを明らかにする事を目的として、比熱測定を行った。

第2章 これまでに行われた研究

本章では、はじめに ^4He の一般的性質とそれを明らかにしてきた研究を説明する。次に、制限空間に閉じこめられた ^4He の先行研究について述べる。最後に、1次元ナノ多孔体 FSM 中 ^4He の研究について述べる。

2.1 ^4He の一般的性質

20世紀初め、水素、窒素、ヘリウムはどんな高圧下でも低温下でも液化しない“永久気体”とされていたが、いずれも液化が報告された。ヘリウムは、1908年オランダ人物理学者 Kamerlingh Onnes によって液化された。その後、Onnes は飽和蒸気圧上に奇妙な振る舞いを報告した。これが“超流動”であると理解されたのは1930年代後半のことだった。超流動の発見以降、多くの特異な性質を示すことが実験的に明らかになり、 λ 転移と超流動の研究は発展してきた。

2.1.1 バルク液体 ^4He の性質と超流動

図2.1に低温域の ^4He の温度圧力相図を示す。液体 ^4He は、大気圧で温度を下げると、およそ4.2 Kで液化し、絶対零度まで液体のままとどまる。絶対零度で ^4He 原子の液体であるのは、 ^4He 原子の運動エネルギーと ^4He 原子の van der Waals ポテンシャルエネルギーを比べると、運動エネルギーの方が大きくなるからである。通常の系はポテンシャルが十分深く零点運動エネルギーは無視できるが、ヘリウムの場合ポテンシャルが浅く、質量が軽いために零点運動が大きい。 ^4He の場合、固体になるのは、2.5 MPa以上の加圧時である。

液体 ^4He は2.17 K以下で粘性がゼロになる性質(超流動性)を示す液体へ相転移をする。この液体 ^4He の超流動転移は2次相転移の典型例であり、図2.1.1のように比熱の異常が観測される。この異常がギリシャ文字の λ (ラムダ)と似ているので λ 転移、また転移の起こる温度をラムダ点 T_λ と呼ぶ。また、温度圧力相図上の T_λ をむすんだものを λ 線と呼ぶ。液体 ^4He は T_λ 以上で常流動相(He I)、 T_λ 以下では超流動相(He II)の液体である。He Iは粘性は小さいものの、通常の液体として振る舞う。一方、He IIは後述のように通常の液体とは異なる性質を持ち、こ

これはボース粒子である ^4He が Bose-Einstein 凝縮 (BEC) を起こした状態であると
考えられている。

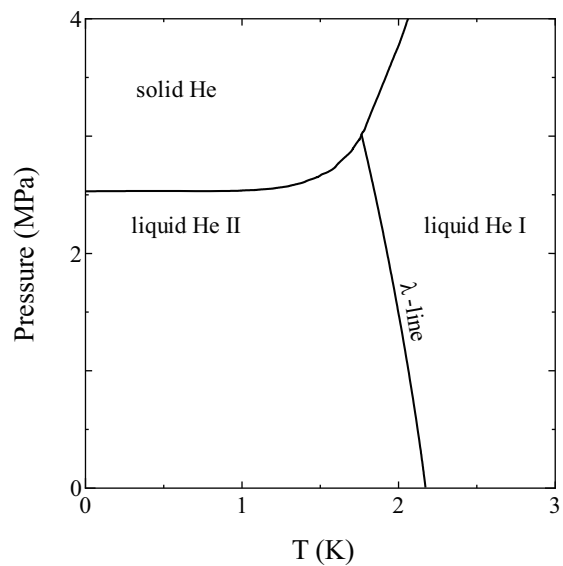


図 2.1: バルク ^4He の温度圧力相図 [1].

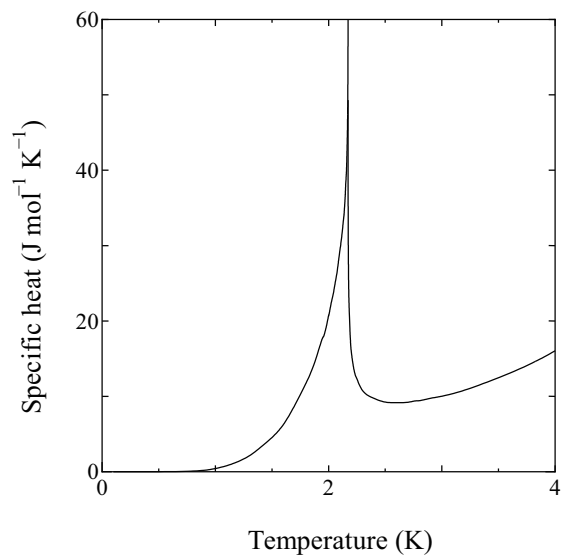


図 2.2: 飽和蒸気圧下での ^4He の比熱 [2].

2.1.2 Bose-Einstein 凝縮と ^4He

超流動は ^4He 原子が Bose-Einstein 凝縮 (BEC) を起こしたことに起因していると考えられている。まず、理想気体における BEC を説明する。

理想ボース気体では、ある温度 T_B 以下では、巨視的な数の原子が最低のエネルギー準位に落ち込む。 N 個のボース粒子が体積 V の容器に入っているとす。このとき励起状態に存在する粒子数は、

$$N(T) = \frac{Vm_4^{3/2}}{\sqrt{2\pi^2\hbar^3}} \int_0^\infty \frac{\varepsilon^{1/2}}{e^{(\varepsilon-\mu)/k_B T} - 1} d\varepsilon \quad (2.1.1)$$

で与えられる。今、式 (2.1.1) を $\mu = 0$ とすると、低温で状態 0 以外のエネルギーの高い状態を占める粒子数の最大値である。これを $N'(T)$ とすると

$$N'(T) = \frac{Vm_4^{3/2}}{\sqrt{2\pi^2\hbar^3}} \int_0^\infty \frac{\varepsilon^{1/2}}{e^{\varepsilon/k_B T} - 1} d\varepsilon = N \left(\frac{T}{T_B} \right)^{3/2} \quad (2.1.2)$$

となる。全粒子数から励起状態に存在する粒子数を引くことで基底状態に存在する粒子数 N_0 が求められ

$$N_0(T) = N - N'(T) = N \left[1 - \left(\frac{T}{T_B} \right)^{3/2} \right] \quad (2.1.3)$$

となる。 T_B よりも上の温度では、粒子はすべて励起状態に存在し、絶対零度と T_B の間の温度では、基底状態に存在する粒子と励起状態にいる粒子が存在する。 T_B 以下では非常に多数の原子は基底状態に落ち込む。これを BEC という。

2.1.3 2 流体模型

1938 年、Tisza[3] は 2 流体模型とよばれる現象論により、超流動を説明した。 $T < T_\lambda$ では、次のような流体は独立な 2 成分、「超流体」と「常流体」の混合体で構成されている。そして、それぞれが密度 ρ_s, ρ_n を伴い速度場 \vec{v}_s, \vec{v}_n で流れる。 ^4He の全密度は

$$\rho = \rho_n + \rho_s \quad (2.1.4)$$

全流体密度は

$$\vec{j} = \rho_n \vec{v}_n + \rho_s \vec{v}_s \quad (2.1.5)$$

となる。常流体成分は粘性を持っており、通常の液体と同様に振る舞う。一方、超流体成分は障害物や狭い流路間でも摩擦無しに流れることができる。1946 年、Andronikashvili らは、図 2.3(b) のようなねじれ振子を用いて超流動密度の温度

依存性を初めて観測した [5]. 0.2 mm 程度の間隔で薄い金属円盤を積み重ねて、それをねじりファイバーで吊し、液体 ^4He の中で回転振動させて金属円盤の慣性モーメントを測定する事で、超流動密度と常流動密度を知ることが出来る. 流体へ運動の影響が及ぶ範囲 (粘性長) l_η は、金属円盤の振動数を ω , 粘性率を η として、

$$l_\eta = \left(\frac{2\eta}{\rho_n \omega} \right)^{1/2} \quad (2.1.6)$$

で与えられる [4]. 今、金属円盤の間隔は T_λ 以上の温度で流体が金属円盤に引きずられて共に振動する l_η より十分狭いので、常流体は全て金属円盤の振動に追従する. しかし、温度を T_λ 以下にすると急激にねじれ振動の固有周期が減少する. それは全ての金属円盤間の液体 ^4He が、金属円盤と共に振動できていないことを示している. 金属円盤が ^4He に浸っていない時と、常流体が付着している時の振動数の差から常流動密度 ρ_n を求める事が出来る.

のちに、全温度領域にわたって調べられた ρ_s , ρ_n を図 2.3(a) に示す. 図 2.3 より、1.0 K 以下ではほぼ 100 % が超流動になっていることがわかる.

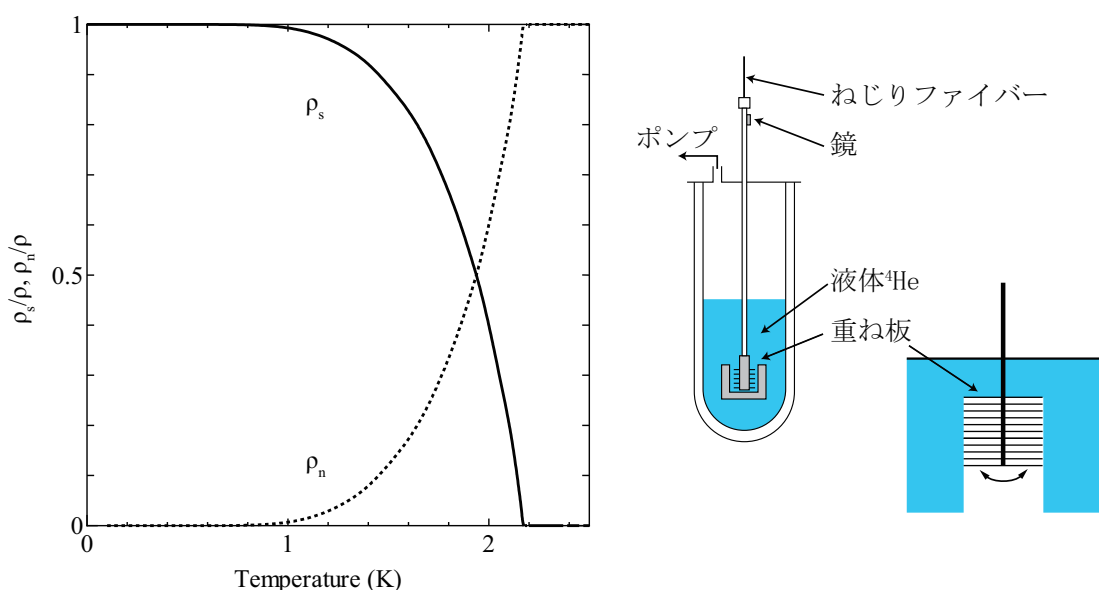


図 2.3: ねじれ振り子を用いた ^4He の超流動密度測定. 左の図は全密度 ρ で規格化したの超流動密度 ρ_s/ρ , 常流動密度 ρ_n/ρ の温度依存性のグラフである. 右の図は、Andronikashvili らによる密度測定装置と 等間隔で積み重ねた金属円盤をねじれファイバーで吊して液体 ^4He に浸した状態の概略図である [5][6].

2.2 3次元細孔に閉じこめた⁴Heの先行研究

制限空間中の⁴Heの超流動や固液転移などの特性は、バルク⁴Heと異なる。ここでは、最近までの研究として、多孔質ガラスVycorとGelsil中⁴Heの研究を示す。

2.2.1 ⁴Heの超流動転移におけるサイズ効果

凝縮体は波動関数の空間的変化の特徴的長さである相関長を持っている。超流動転移点で、相関長が発散し、0 Kでは数10 nmである。凝縮体が制限された空間に閉じこめられている場合、波動関数は壁や境界で消える。転移点付近で相関長が制限空間の壁面間隔より長い時は転移しない。ただし、本来の転移温度より低温で、相関長が壁面間隔より短くなり相転移する。

バルク⁴Heの転移温度と細孔径 d の制限空間内⁴Heの転移温度は、 $(T_c - T) \propto d^{-\nu}$ と書けることが知られている。これまで様々な細孔径の制限空間内⁴Heで T_c の低下が観測され、図2.4のようにまとめられた[7]。この結果に $(T_c - T) \propto d^{-0.67}$ の直線を描くと、実験の結果を再現すると報告されている。また、Wadaらの1 μm から数 nmのさらに細い細孔径で測定を行った結果では、 ν が0.64になると報告している[8]。

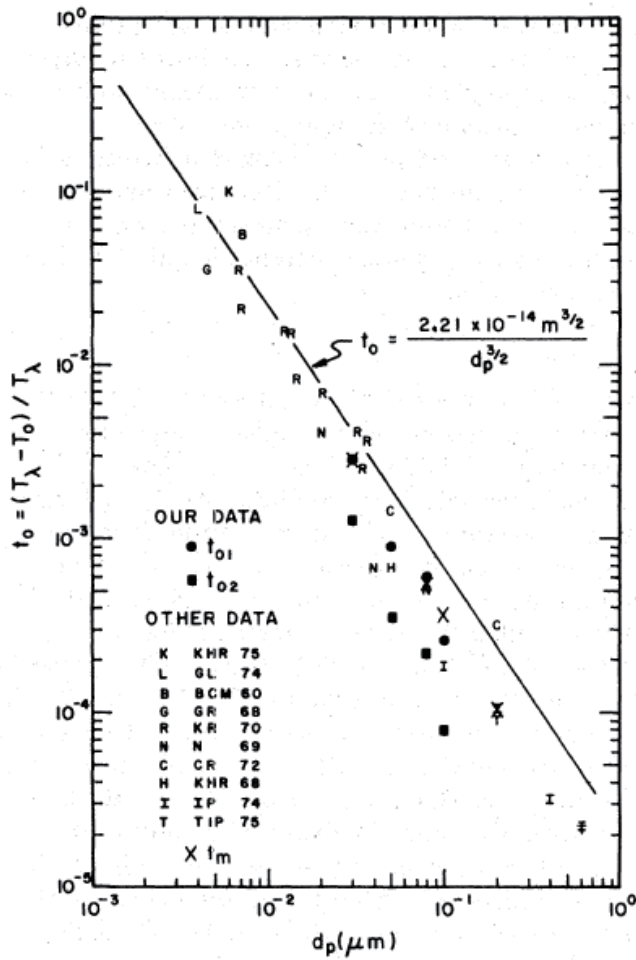


図 2.4: 超流動転移温度の孔径依存性 [7].

2.2.2 多孔質 Vycor ガラス中の超流動

試料合成技術の向上により、数 nm の細孔径内 ^4He の細孔の作製が可能となった。例えば、多孔質 Vycor ガラスは、図 2.5 のように孔径 6 nm 程度の細孔が 3 次元ネットワークをもつ構造をしている。

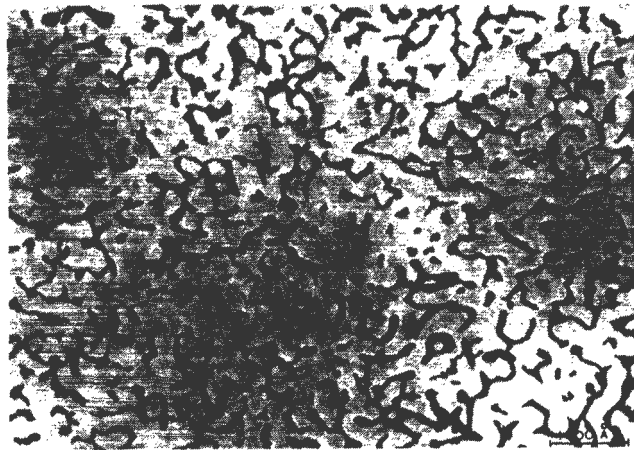


図 2.5: 多孔質ガラス「Vycor」の断面図 [12]. 黒がガラス部分で白が空間部分である.

このような制限された系中 ${}^4\text{He}$ の超流動転移や固体液体転移を以下に示す. 図 2.6 は Adams らの定積圧力測定の結果である [13]. 超流動転移温度はサイズ効果により, バルクと比べて 0.2 K 程度低温側に移動している. 一方, 固化圧力はバルクと比べて高圧, 低温側に移動する. 彼らは, 固化圧力の上昇を均一核形成の理論で説明した. 一般的に ${}^4\text{He}$ が固体の表面をぬらさないことが知られており, 固体の形成は多孔質ガラス基盤からはじまるのではなく, 壁から離れた細孔の中心付近の液体から固体の核が形成する. このとき, 多孔質ガラスの孔が非常に狭いと, 固体の核の成長が抑制される.

Kiewiet らは, 第 4 音波測定で超流動密度の測定を行った [15]. 図 2.7 は彼らが測定した Vycor 中飽和蒸気圧下の液体 ${}^4\text{He}$ の超流動密度 ρ_s/ρ の温度依存性である. T_c は低温へ大きくシフトし, ρ_s/ρ 全体が低温へシフトしていることがわかる. 図 2.8 は温度を $1 - T/T_c$ と換算し, 超流動密度を両対数プロットしたものである. 超流動密度は $\rho_s/\rho = A(1 - T/T_c)^\eta$ に従い, 彼らは図 2.8 のフィッティングにより, 臨界指数 η は 0.65 で, バルクの 0.67(2/3) とほぼ等しいとした. そして, Vycor 中液体 ${}^4\text{He}$ はバルクと同様の 3 次元 XY モデルであると主張した.

Zassenhaus らは, 詳細な比熱測定をおこなった [16]. 図 2.10 には, 熱容量セル全体の熱容量を示す. バルクの寄与と思われるシャープなピークとやや低温にブロードなピークがあることがわかる. さらに彼らは, 図 2.10 にあるように, 2 K 付近に小さい比熱の異常を観測したと報告した. ねじれ振子で観測した超流動転移温度と同様の温度である.

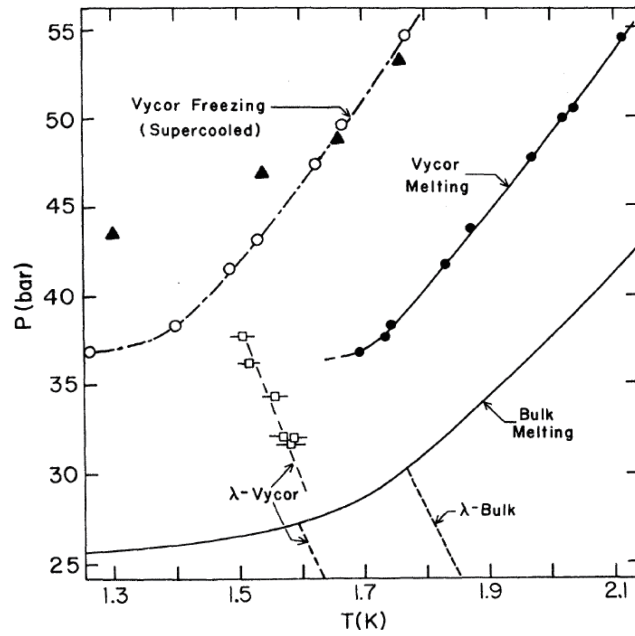


図 2.6: Vycor 中 ^4He の温度圧力相図 [13]. \blacktriangle 以外の点は E. D. Adams らによるものである. \blacktriangle は J. R. Beamish らによるものである [14]. Vycor Freezing ラインは Vycor 中 ^4He が過冷却から固化する温度, Vycor Melting ラインは溶解する温度.

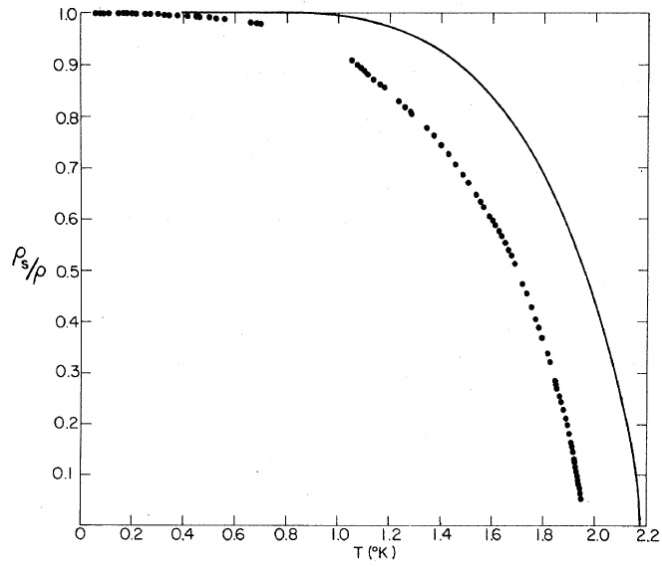


図 2.7: Vycor 中液体 ${}^4\text{He}$ の超流動密度 ρ_s/ρ の温度依存性. 実線は飽和蒸気圧下のバルク ${}^4\text{He}$ の ρ_s/ρ [15].

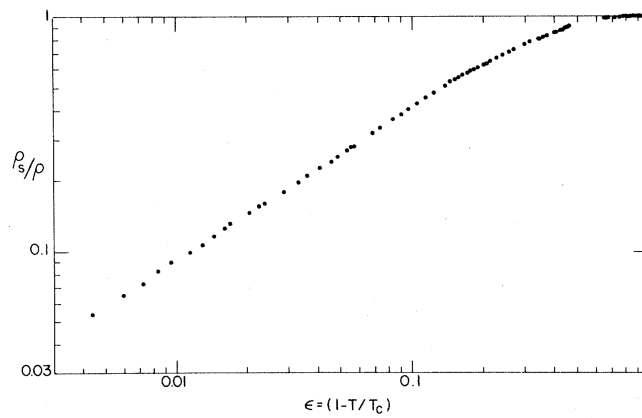


図 2.8: 両対数プロットした Vycor 中液体 ${}^4\text{He}$ の超流動密度 [16].

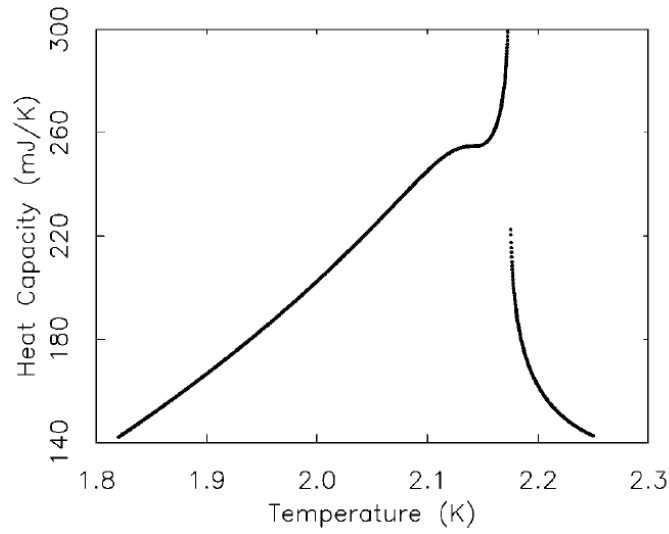


図 2.9: Vycor 比熱測定用セル全体の熱容量 [16].

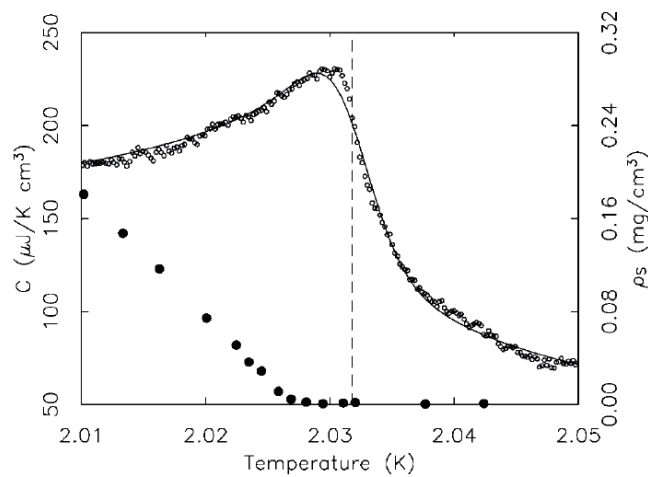


図 2.10: Vycor 中液体 ^4He における T_c 近傍の比熱異常と超流動密度 [16].

2.2.3 多孔質 Gelsil ガラス中の超流動

多孔質ガラス Gelsil ガラスは、公称孔径が 2.5 nm の細孔がランダムな 3 次元ネットワークを形成している多孔質ガラスである。細孔の複雑な接続は Vycor ガラスと似ているが、平均細孔径が Vycor ガラスの 6 nm よりも小さい。Gelsil 中

^4He に関しては、Yamamoto らによって超流動密度 [17], 熱容量 [18], 固化圧力 [19] が報告されている。

超流動密度はねじれ振り子を用いて観測され、細孔内壁に吸着した薄膜状態から細孔内加圧下液体状態に至る課程で測定が行われた。図 2.11 にそれらの超流動密度の温度依存性を示す。図 2.11(a) は薄膜の超流動密度の温度依存性で、薄膜状態では吸着量 n を増やすと、膜厚 $20 \mu\text{mol}/\text{m}^2$ から超流動が観測される。各膜厚の超流動の立ち上がり温度 T_c を図 2.13 のようにプロットすると、 n の増加に比例して T_c が高温へ移動することがわかる。また、 n が大きいおよそ $n = 30 \mu\text{mol}/\text{m}^2$ 以上では、 T_c は n に比例しない。彼らは、この膜厚域では細孔中が液体 ^4He で埋まって、密度変化がないとした。

加圧下液体状態での超流動は図 2.11(b) のように観測され、2 K 付近でセル内のバルク ^4He が超流動転移し周波数は立ち上がる。更に低温で、細孔中 ^4He が超流動転移し、周波数は立ち上がる。また、立ち上がり温度は加圧すると低温側へ移動することもわかる。

図 2.11(c) はバルク液体 ^4He が固化する 2.5 MPa よりやや高圧の結果である。細孔内には液体が存在し超流動密度の成長が観測される。また、加圧下液体では、加圧により周波数の立ち上がり温度は低温側に移動し、 Δf は減少することがわかる。

次に、Gelsil 中 ^4He の熱容量測定を紹介する。図 2.12 に $0.25 \text{ MPa} < P < 3.58 \text{ MPa}$ における熱容量測定の結果を示す。図 2.12(a) は $P > 0.25 \text{ MPa}$ における結果で、熱容量は 2 K 付近で鋭いピークを示し、1.8 K 付近で肩を持つ。彼らは、この鋭いピークと肩はセル内オープンスペースにおけるバルク液体 ^4He の λ 転移によるものとした。図 2.12(b) は $3.02 \text{ MPa} < P < 3.58 \text{ MPa}$ における結果である。この圧力域では、オープンスペースのバルク ^4He は固体となる。図 2.12(c) は $0.25 \text{ MPa} < P < 3.58 \text{ MPa}$ におけるオープンスペースのバルクの寄与を差し引いた細孔中液体 ^4He の熱容量と、 $3.02 \text{ MPa} < P < 3.58 \text{ MPa}$ の結果を合わせてプロットしている。熱容量は全ての圧力下で温度 T_B にブロードなピークをもち、加圧すると単調に低温側に移動し、ピークの高さは減少する。

これらの結果は、図 2.14 の温度圧力相図でまとめられた。 T_B はバルクの λ 線を 0.2 K 程低温にシフトしたようになり、 T_c よりも高温に位置する。これは、制限空間内の超流動のサイズ効果だろうが、 T_c が T_B の遙か低温であることから、 T_B は超流動転移によるものではないと彼らは説明した。

彼らは、熱容量のピークは localized Bose-Einstein condensates (LBECs) の形をとっていると主張している。LBEC は多孔体の細孔径分布や細孔構造のランダムさに起因していると考えられている。 T_B 以下では、多くの BECs は ^4He の位置交換が可能な太い径で表れはじめる。一方、細い径での BECs の位置交換は ^4He

のハードコアの影響で抑制される。この BECs の位置交換の抑制は、全系における大域的な位相コヒーレンスの欠陥を引き起こす。このとき、超流動成分がセル全域につながっていないので、ねじれ振子では超流動は観測されない。また、 T_B 以下の LBEC の存在を熱容量で説明している [18]。1 K 付近において、熱容量はロトン励起によって説明できる。図 2.15(a) では、 T^{-1} に対する $CT^{3/2}$ をプロットした。ロトンの熱容量は A を定数、 Δ/k_B をロトンエネルギーギャップとすると、 $C = AT^{-3/2} \exp(-\Delta/k_B T)$ とできる。挿入図より、バルク ^4He の Δ/k_B は加圧すると単調に減少する。熱容量は 2.5 MPa 以上でロトンとよく一致することは重要である。この圧力域では T_c は 1 K より低温で観測され、観測結果はナノ細孔内の LBECs の様なロトンの存在を証明しているとしている。0.7 K 以下の熱容量は、フォノン励起によって説明できる。図 2.15(b) は $P < 3.58\text{MPa}$ における液体 ^4He と 4.45 MPa における固体 ^4He の熱容量を両対数プロットしたものである。0.7 K で液体 ^4He は T^3 によくフィットする。これは、3D フォノンからの熱容量であることを示している。また、液体状態だけではなく、固体状態も T^3 にフィットする。

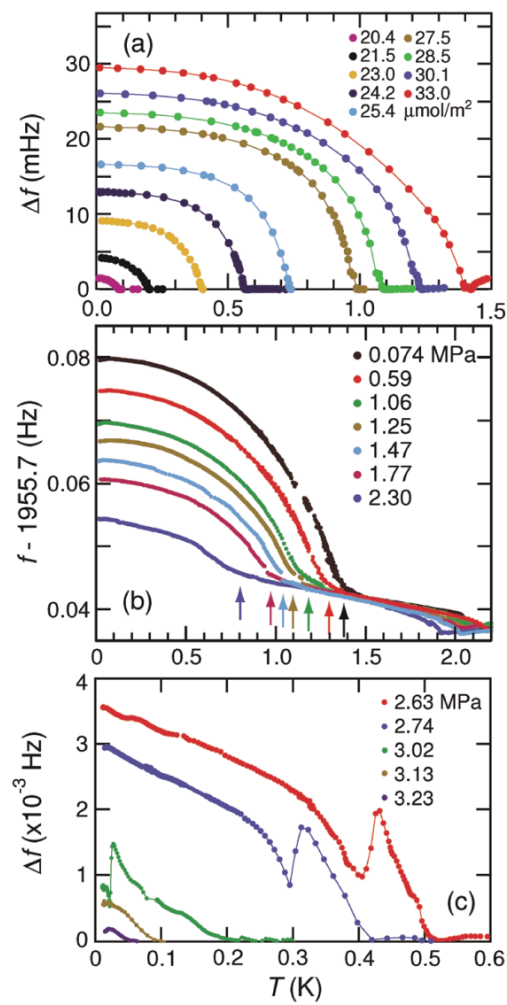


図 2.11: (a) ^4He 薄膜の周波数変化, (b) 加圧下液体 ^4He の周波数変化, (c) バルクの凝固圧以上の周波数変化の温度依存性 [17].

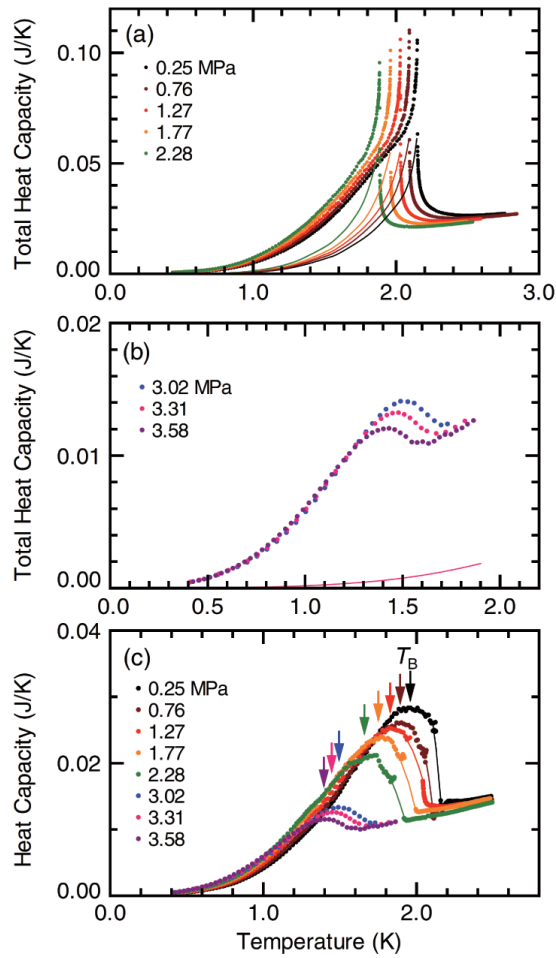


図 2.12: (a) 2.5 MPa 以下の全熱容量. 実線はサンプルセルオープンスペースのバルク ^4He の熱容量. (b) $3.02\text{MPa} < P < 3.58\text{ MPa}$ におけるバルクは固体, Gelsil 中は液体 ^4He のときの全熱容量. (c) $0.25\text{MPa} < P < 3.58\text{ MPa}$ におけるオープンスペースのバルクの寄与を差し引いた熱容量. 熱容量は T_B でブロードなピークを示す [18].

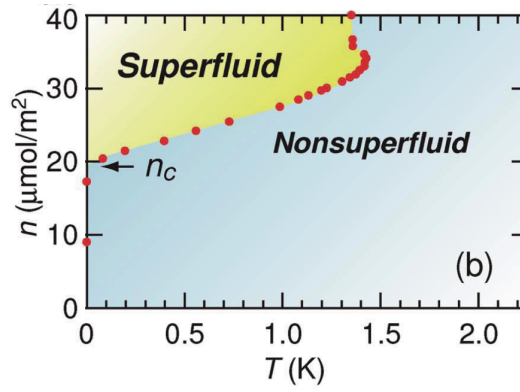


図 2.13: Gelsil 中 ^4He 薄膜の温度圧力相図 [17].

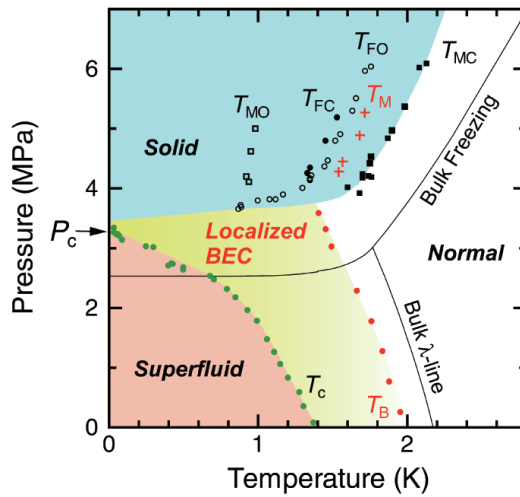


図 2.14: Gelsil 中 ^4He の温度圧力相図 [18].

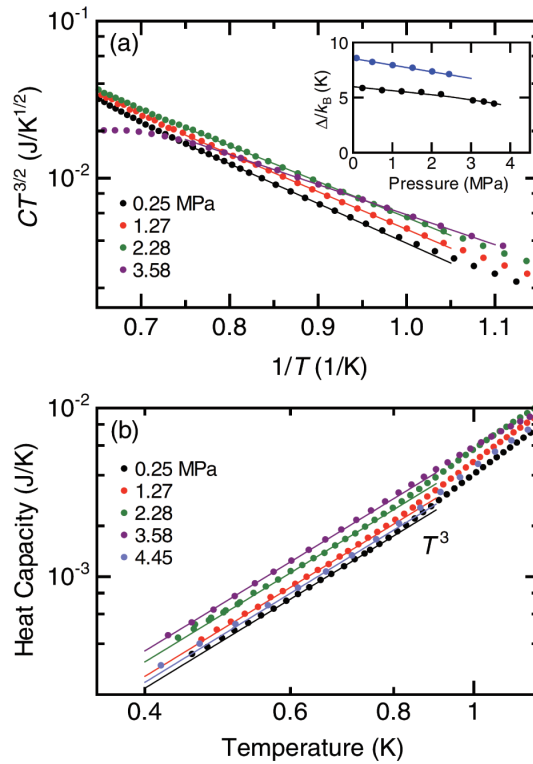


図 2.15: (a) Gelsil 中液体 ^4He の高温側の熱容量. 縦軸が T^{-1} , 横軸が $CT^{3/2}$. 挿入図は Gelsil 中 ^4He におけるロトンエネルギーギャップ Δ/k_B (黒) の圧力依存. 青色はバルクの振る舞い. (b) 低温側の熱容量 (Log プロット). 実線は 0.4 – 0.7 K 間で T^3 とフィッティングした様子 [18].

2.3 1次元ナノ多孔体 FSM 中の ^4He の研究

前節では, 3次元に複雑に接続した様々な細孔径の試料に閉じこめた ^4He の先行研究を紹介した. これらの超流動転移温度は細孔径でスケールされると考えられているが, さらに小さな細孔径や, 細孔の接続性がない試料で超流動が観測され, 同様にスケールされるかはわかっていなかった.

そこで, Ikegami らは, 細孔分布が小さく細孔が交わらない特徴をもつ 1次元ナノ多孔体 folding sheet mechanism (FSM)¹ を用いた超流動の研究を報告した.

¹以降, 詳細は第 3 章を参照.

2.3.1 薄膜状態の超流動応答

Ikegami らは細孔径が 3 nm である FSM に対し、細孔壁面に吸着した薄膜 ^4He の超流動応答の実験をねじれ振り子によって観測した [24]. 図 2.16 のように、 ^4He ガスの導入量を制御し、様々な導入量で超流動応答を報告している. 吸着薄膜状態の超流動応答は、周波数は鋭く立ち上がり、低温で一定の値になる. この立ち上がり温度より低温でブロードな ΔQ^{-1} のピークが観測された. 吸着 ^4He が一層完了を n_1 とし、 n/n_1 が 1.56 から 1.94 の導入量で観測された超流動応答は全て特徴的な ΔQ^{-1} のピークが観測されている.

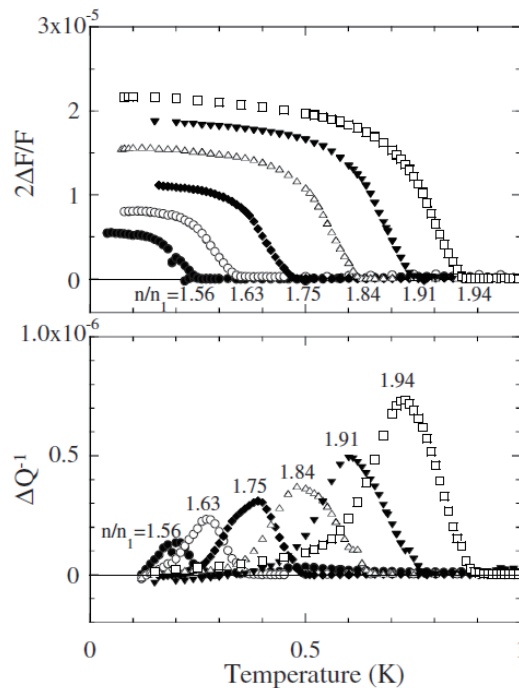


図 2.16: 細孔径 3 nm の FSM 中薄膜 ^4He の超流動応答 [24]. ねじれ振り子の周波数変化 (上図), ΔQ^{-1} (下図) の温度依存性をしめす. 導入量は一層完了時の導入量 n_1 で規格化されている.

2.3.2 加圧液体状態の超流動応答

細孔径 3 nm の細孔について

Taniguchi らは、細孔径が 3 nm の FSM 中加圧下液体 ^4He に対するねじれ振り子測定をおこなった [20]. この測定に使われたねじれ振り子は、4 K で共振周波数は 2.06 kHz, Q 値は 1.3×10^6 であった. 図 2.17 は細孔中の様々な圧力下の共振

周波数と Q^{-1} の変化である. およそ $T/T_\lambda = 0.4$ まで, 全圧力のデータは良い一致を示し, 低温では圧力に依存することがわかる. 0.11 MPa について, 立ち上がり温度 T_0 で $\Delta f'$ の急な増加が観測され, 圧力を増加すると低温での T_0 は低温側へ移動し, 立ち上がり量は小さくなる. さらに加圧すると, 2.3 MPa 以上で $\Delta f'$ の立ち上がりは観測されなかった. 一方, Q^{-1} は, $T/T_\lambda = 0.5$ まで一致し, 低温で圧力に依存する. 0.11 MPa において, Q^{-1} はおよそ $T/T_\lambda = 0.5$ から増加しはじめ, $T/T_\lambda = 0.36$ で最大値をとることがわかる. ピーク温度 T_{peak} は加圧すると低温へ移動し, ピークは小さくなり, 2.3 MPa 以上では Q^{-1} のピークは観測されなかった.

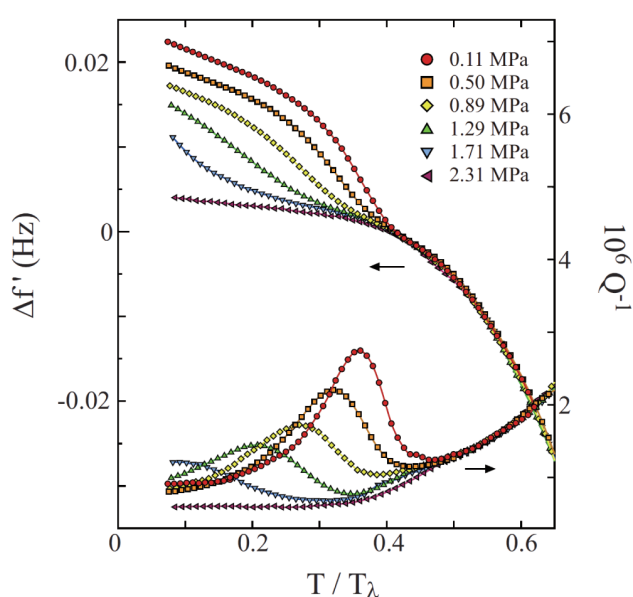


図 2.17: FSM16 細孔中の様々な圧力下における共振周波数と Q^{-1} の温度変化. 温度は各圧の T_λ で規格化されている. $\Delta f'$ はバルクの絶対零度の周波数からの変化を示している [20]. $\Delta f'$ は密度比 $\rho(0.1\text{MPa})/\rho(P)$ によって規格化されている.

そのほかの細孔について

3 nm 以外の細孔径についても超流動応答の観測が行われている. 細孔径は合成時に用いる界面活性剤の炭素鎖の長さ n に依存する. 3 nm は $n=16$ であり, これまで Taniguchi らは n が 12, 22, そして $n=16$ にメシチレンを導入して細孔径を広げた試料についてねじれ振り子測定を行った.

図 2.18 は合成時 $n = 12$ である $n=12$ のペレットにおける ^4He の圧力が 0.10 MPa におけるねじれ振り子測定の結果である. ペレットの内のバルクの寄与を差し引

かれていない。細孔径 3 nm の細孔で観測された低温での周波数の立ち上がりや吸収ピークが観測されないことがわかる。

FSM の周波数の急な立ち上がり温度 T_o と T_{peak} を温度圧力相図にプロットしたものが図 2.19 である。 T_o は $n=22$, Mes に関しては T_λ ラインをシフトした形をしているが、細孔径 3 nm の結果は加圧による低温側への移動が強くなっている。また、細孔径 3 nm の T_o は他の孔径と比べると、大きく低温へ移動していることが分かる。このように、細孔中超流動応答は細孔径に大きく依存し、 $n=12$ では低温へシフトして観測されないというのが彼らの主張である。

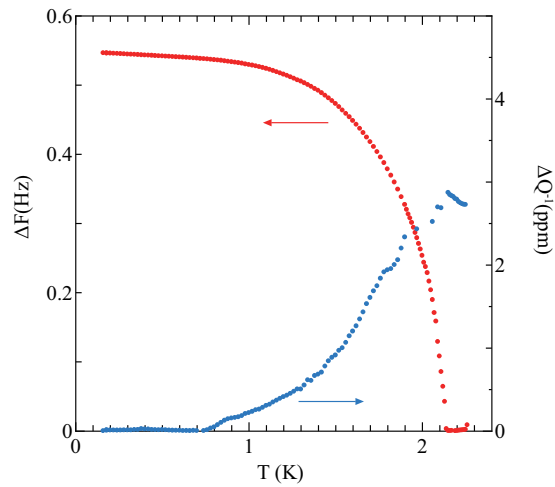


図 2.18: FSM12 ペレット内 ^4He の 0.1 MPa おける共振周波数と ΔQ^{-1} の変化. ΔF は T_λ における周波数からの変化を示している. ΔQ^{-1} は最低温からの変化.

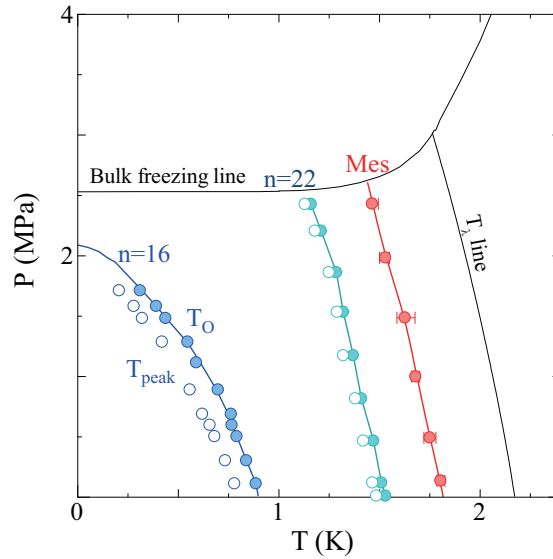


図 2.19: 加圧下液体 ^4He の温度圧力相図 [21][20]. 様々な孔径の FSM における超流動密度の急な立ち上がりを T_0 , 吸収ピークの温度を T_{peak} としている.

2.3.3 異方的 XY モデルによるヘリシティモジュラスの計算

ここでは、異方的 XY モデルによる細孔中 ^4He の超流動密度の計算を紹介する. このモデルでは、ヘリシティモジュラス Υ が超流動密度に対応する.

円筒薄膜状態

細孔中の吸着薄膜 ^4He は、円筒状になっていることが考えられる. Yamashita らによって、2次元古典 XY スピン格子系を用いてモデル化した計算が行われた [9]. 彼らは、細孔内の表面に吸着した ^4He に対応する 80×80 の正方格子の一部を切り取り、図 2.20 のように細孔をモデル化した. 40 格子幅 w の細長いスピン格子数本の束で細孔を置き換えている. 細長い部分のアスペクト比 A (長さ L / 幅 w) は、1次元格子系の特徴的な長さ L_{eff} として区別される. 図の x 軸方向のヘリシティモジュラス (helicity modulus) Υ_x は超流動密度に対応する. 正方格子の場合、 $k_B T \approx 1$ で2次元の KT 転移を再現する. 細長いスピン格子があると、 Υ_x は $k_B T \approx 1$ 付近で上昇するものの、低温で再び緩やかに立ち上がる. この成分は、 w を小さくすると立ち上がり温度は低温へ移動する.

彼らは、実験で様々な細孔径中に吸着した ^4He の超流動が観測され、超流動の振る舞いとオンセットの細孔径依存性は計算結果と定性的に一致するとした.

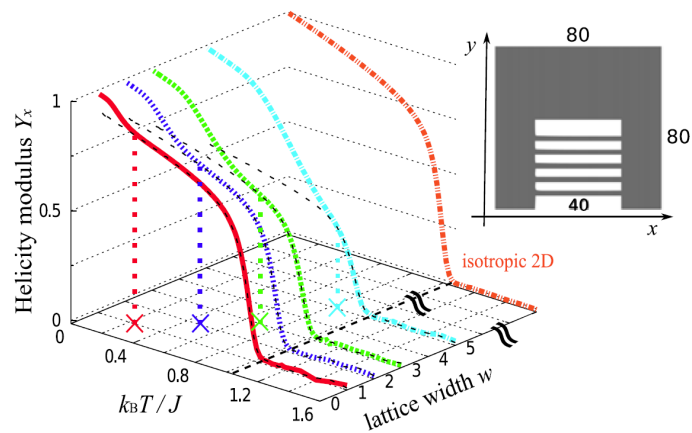


図 2.20: XY スピン格子系を用いるためにモデル化された細孔 (挿入図) とヘリシティモジュラス Υ_x [11]. モデル化された細孔は長さが 40 で、幅は w 格子. アスペクト比は、長さ L と直径 d を用いて、 $A = L/\pi d = 40/w$ と表される.

1 次元極限

Yamashita らは擬 1 次元格子における古典 XY モデルのヘリシティモジュラスの計算を報告した [10]. 格子は $L_x \times L_x \times L_z$ ($L_z \gg L_x$) とし、様々な有効 1 次元長さ $L_{\text{eff}} = L_z/L_x^2$ に対して計算を行った. 図 2.21 は 3 次元格子から擬 1 次元へ近づけていった時の計算結果で、1 次元へ近づけると立ち上がり温度が大きく低温へシフトしていくことがわかる. また、 L_z を 4 倍変えても振る舞いに大きな変化は見られないこともわかる. 図 2.22 は L_z を 1000 とし、1 次元極限の計算結果で、 L_x を 2, 4, 5 としたとき、 $L_x = 1$ の 1 次元の結果と L_{eff} でほぼスケールされるということがわかる.

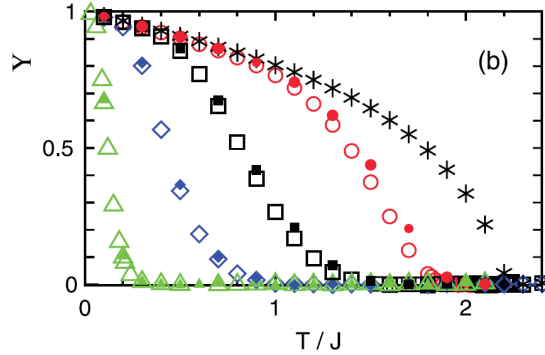


図 2.21: $L_x \times L_x \times L_z$ 格子で定義した XY モデルのヘリシティモジュラス Υ [10]. 白抜きが $L_z = 200$, 塗りつぶしが $L_z = 800$ で, $L_{\text{eff}} = L_z/L_x^2 = 2$ (丸), 5.56 (四角), 12.5 (ダイヤモンド), 50 (三角). 比較のための 3次元格子 ($30 \times 30 \times 30$).

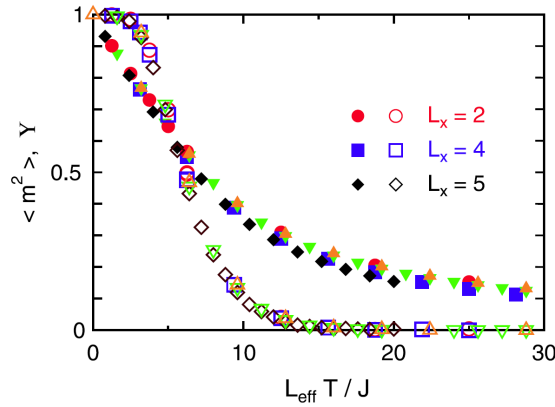


図 2.22: 擬 1次元と 1次元でのヘリシティモジュラス (白抜き). 横軸は $L_{\text{eff}} (L_z/L_x^2)$ で規格化された温度 [10]. 赤, 青, 黒のプロットは L_z を 1000 としている. 1次元 XY モデルとして, L_z を 160 としたものは ∇ , 320 としたものは \triangle

2.3.4 朝永・Luttinger 液体モデルに基づく 1次元超流動の動的理論

超流動応答の理論研究として, 朝永・Luttinger 液体モデルに基づく 1次元超流動の動的理論を紹介する. 3次元 Fermi 粒子系の低温での性質は, フェルミ液体論で理解されている. 電子の相互作用は有効質量などに繰り込まれ, 準粒子として振る舞う. 3次元 (Fermi 粒子) 系では, 図 2.23 の左のように運動量分布関数はフェルミ面で有限なとびがある. しかし, 低次元になり, 1次元 Fermi 粒子系では,

フェルミ液体論は大きな量子ゆらぎのために破綻する．この場合，フェルミ面は相互作用にならされて運動量分布関数は連続関数になる (図 2.23 右)．しかし，運動量分布の異常は残り，運動量分布関数 (相関関数) はべき依存型の関数 $|k - k_F|^\alpha$ で与えられる．このような量子液体を Tomonaga-Luttinger (TL) 液体と呼ぶ．一般に，Fermi 粒子系だけでなく広い意味で Boson 系も TL 液体とよぶことがある．

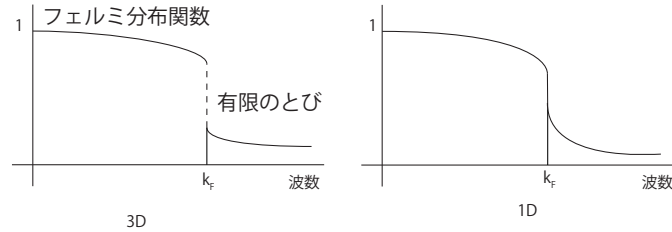


図 2.23: 運動量分布関数.

Eggel らは，1次元 ^4He も TL 液体として振る舞い，低温では量子位相スリップを抑制し，動的な超流動が観測されると指摘している [23]．TLL モデルのハミルトニアンは

$$H_0 = \frac{\hbar v}{2\pi} \int dx [K(\partial_x \theta(x))^2 + K^{-1}(\partial_x \phi(x))^2] \quad (2.3.1)$$

と書ける．TLL モデルは Luttinger パラメーター K で特徴付けられ，1次元超流動では，

$$K = \hbar \pi v \kappa \rho_0^2 \quad (2.3.2)$$

のように書ける．ここで， v は音速， κ は ρ_0 は線密度である．

式 2.3.2 より加圧すると，圧縮率 κ が下がり K も下がる．図 2.24 は 2 kHz の時の $3.2 < K < 9.2$ の範囲における超流動の応答と吸収ピークのシフトを示している．加圧による圧縮率の低下で応答が低温へシフトする計算結果となった．また，図 2.25 は周波数変化に対する計算の結果である．周波数 ω が減少すると，超流動オンセットは低温へ移動することがわかる．挿入図は吸収ピークの温度は観測周波数に依存することを示し，吸収ピークの温度は

$$T_P \propto \omega^{\frac{1}{2K-3}} \quad (2.3.3)$$

とスケールされると報告された．

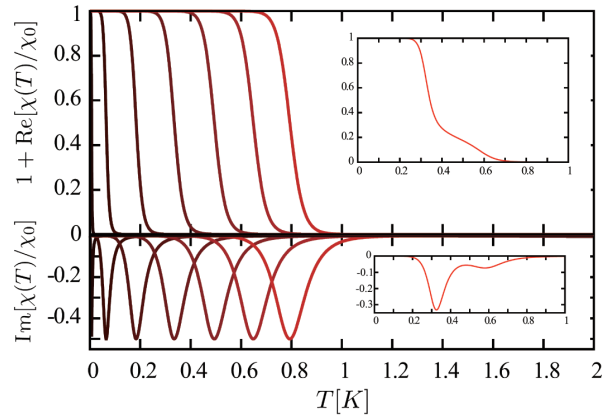


図 2.24: 超流動応答と吸収ピークの Luttinger parameter K 依存性 [23]. $3.2 < K < 9.2$ の範囲の様子で, $K=3.2$ は $T=0$ K 近傍である.

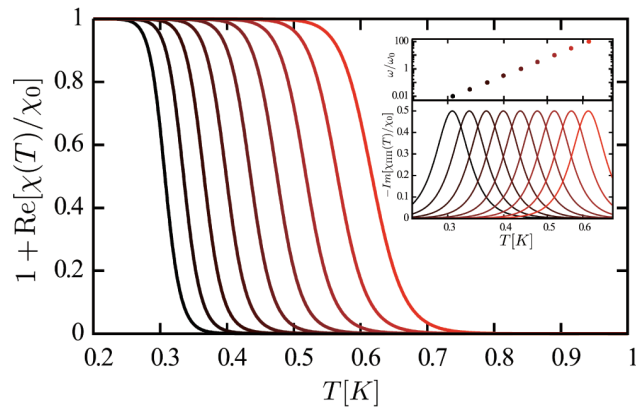


図 2.25: 超流動応答と吸収ピークの周波数依存 [23]. 固定値 $K = 8.1$ における $10^{-2}\omega_0$ から $10^2\omega_0$ の範囲の様子 ($\omega_0 = 2\text{KHz}$).

2.3.5 熱容量測定

Taniguchi らは, 3 nm の FSM 中 ^4He に関する比熱測定を行った [27]. 熱容量測定の設定の概略を図 2.26 に示す. 熱容量測定は断熱パルス法を用いて 0.03 から 2.35 MPa の圧力下で行われた. セルの上部の抵抗ヒーターの熱量をセルの底面に付けた抵抗温度計によって観測し, 熱容量を計測する. 熱流入を防ぐために超伝導線を用い, またキャピラリーの配管の途中に Vycor ガラスを入れたスーパーリークをはさみ, バルク ^4He の熱流入を防いでいる.

図 2.27 に 0.03 MPa 以下の ^4He の全熱容量を示す. オープンスペースのバルク液体 ^4He の超流動転移により, 熱容量は 2.16 K の T_λ で鋭いピークをもっている. 挿入図は横軸温度を $\log_{10}(|T - T_\lambda|/\text{K})$ としたものである. バルクのモル比熱 C_{bulk} は T_λ で発散することが知られていて, 次の式で書ける.

$$C_{bulk} = \begin{cases} -A_0 \log_{10}(|T - T_\lambda|/\text{K}) + B_0 & (T < T_\lambda) \\ -A'_0 \log_{10}(|T - T_\lambda|/\text{K}) + B'_0 & (T > T_\lambda) \end{cases} \quad (2.3.4)$$

定数 A_0 ($T < T_\lambda$) と A'_0 ($T > T_\lambda$) の圧力依存性は Ahlers[25], Okaji ら [26] によって測定されている. 0.03 MPa の場合, $A_0 = 12.34\text{ J/mol K}$ ($T < T_\lambda$), $A'_0 = 11.72\text{ J/mol K}$ ($T > T_\lambda$) であった.

図 2.27 の挿入図にあるように, 式 6.1.1 と T_λ の全熱容量の発散を比べ, 温度依存と A_0/A'_0 の比がよく再現することが確認された. 発散の大きさから, オープンスペースのバルク ^4He は $3.92 \pm 0.27\text{ mmol}$ と評価され, 体積は $113 \pm 8\text{ mm}^3$ である. 一方, 細孔中 ^4He は, 容器の全体積より 5.7 mmol と見積もられている.

図 2.28 に 2.35 MPa 以下の様々な圧力下の細孔中 ^4He の熱容量を示した. また, 5.47 MPa において 0.3 K で固化が始まる様子もプロットしている. 2.35 MPa 以下でオープンスペースのバルク液体 ^4He の熱容量は差し引かれていて, 5.47 MPa ではバルク固体 ^4He の熱容量は存在しない. 0.03 MPa において温度を下げていくと, 1.65 K (T_B) で熱容量の肩が現れる. 彼らは, T_B で低エントロピーに落ち込むことを意味しているとした. 加圧すると, 熱容量の大きさは小さくなり, T_B は低温へ移動する.

図 2.29(a) は, 0.03 MPa における孔を N_2 で満たした系と ^4He で満たした系の T_λ からの周波数と Q 値の変化である. 孔を N_2 で満たした系と ^4He で満たした系は T_λ より周波数が立ち上がり, 温度を下げると増えていく. ^4He で満たした系は T_λ 以下では N_2 で満たした系と一致するが, 1.65 K から離れはじめる. さらに温度を下げると, ^4He で満たした系は 0.89 K で周波数は急に成長し, Q^{-1} は 0.79 K でピークをもつ. T_λ からの周波数シフトに関して, 細孔を ^4He で満たしたのから N_2 で穴埋めしたものを差し引き, 細孔中の寄与を求め, 図 2.29(b) のように示された. 図 2.29(b) には, 0.03 MPa における熱容量測定の結果も示されている. 細孔中の周波数シフトは 1.65 K ではじまり, 熱容量のブロードな肩の温度と一致する. この温度を T_B とした.

図 2.30 はねじれ振子測定と熱容量測定の超流動密度の急な立ち上がり T_0 , 熱容量の肩の温度 T_B , 固化が始まる温度 T_{FO} を温度圧力相図に示したものである. T_B は低圧で弱い圧力依存があり, 1.5 MPa 以上ではほとんど圧力依存がない. T_0 は加圧するほど早く低温へ移動し, 2.1 MPa 付近で絶対零度に向かう.

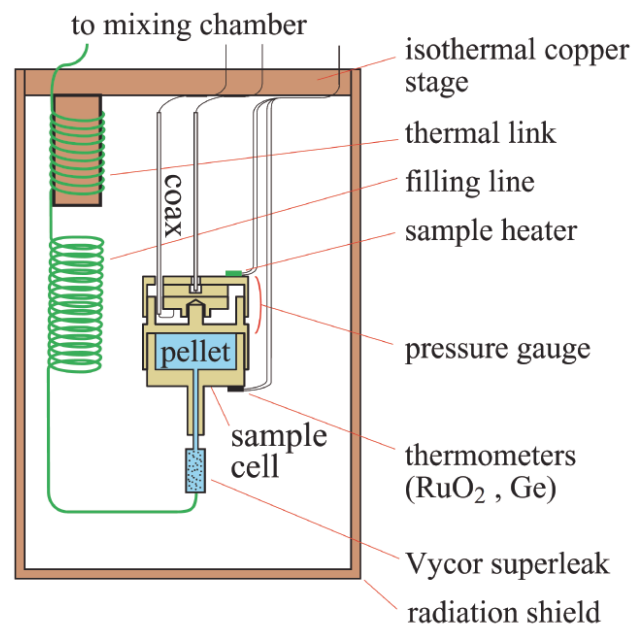


図 2.26: 熱容量測定セットアップの模式図 [27].

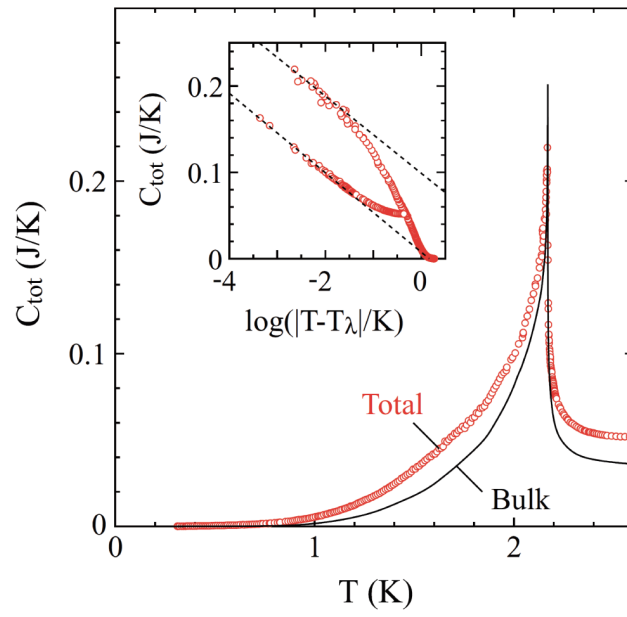


図 2.27: 0.03 MPa 以下でセル内の ^4He の全容量. バルク液体 ^4He の寄与は実線で示されている. 挿入図は全熱容量を $\log_{10}(|T - T_\lambda|/K)$ に対しプロットしたもの [27].

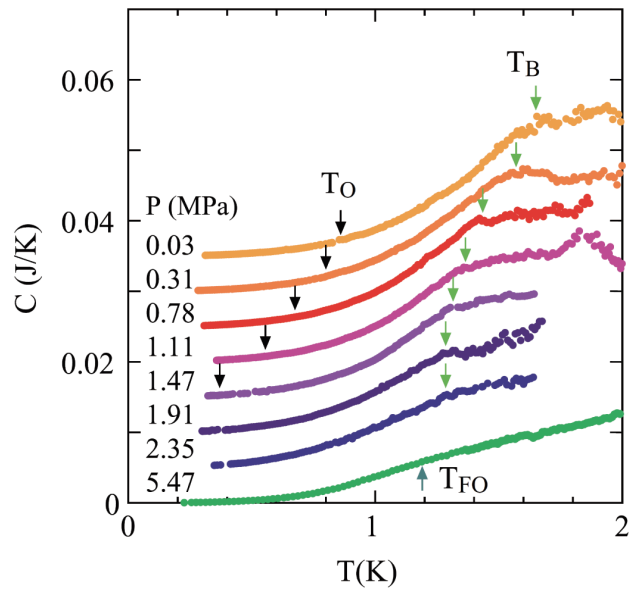


図 2.28: 様々な圧力における孔径 3 nm 細孔中の熱容量 [27]. 縦にシフトしてある. 熱容量の肩の温度 T_B , ねじれ振り子測定の周波数の立ち上がり温度 T_O [20] を矢印でプロットしている. T_{FO} は固化しはじめる温度 [28].

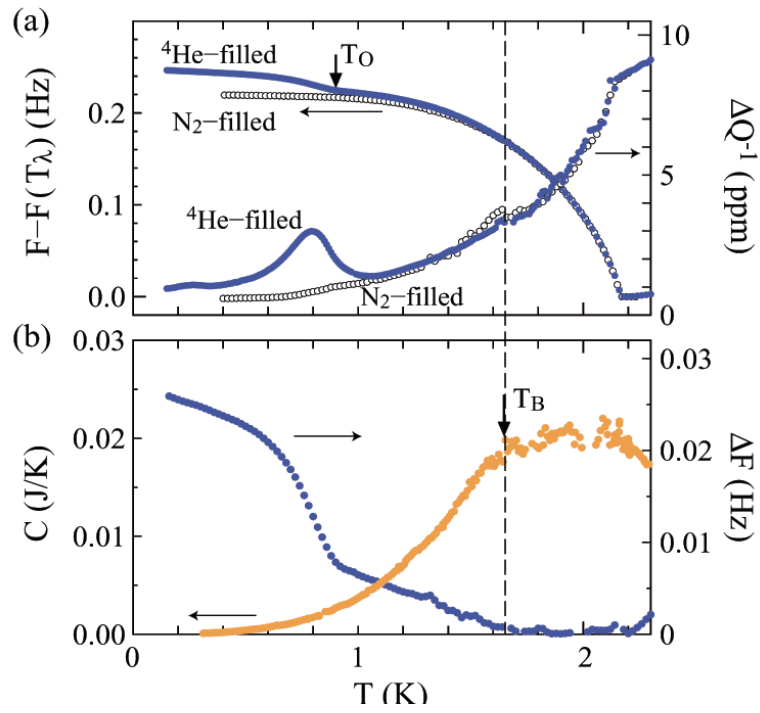


図 2.29: (a) T_λ からの周波数と Q 値の変化. 0.02 MPa でのベタ, 白丸のマークはそれぞれ細孔を ^4He で満たした系と N_2 で埋めた系を表している. (b) N_2 で細孔を埋めた系からの周波数シフトの変化と 0.03 MPa 下での細孔内の熱容量 [27].

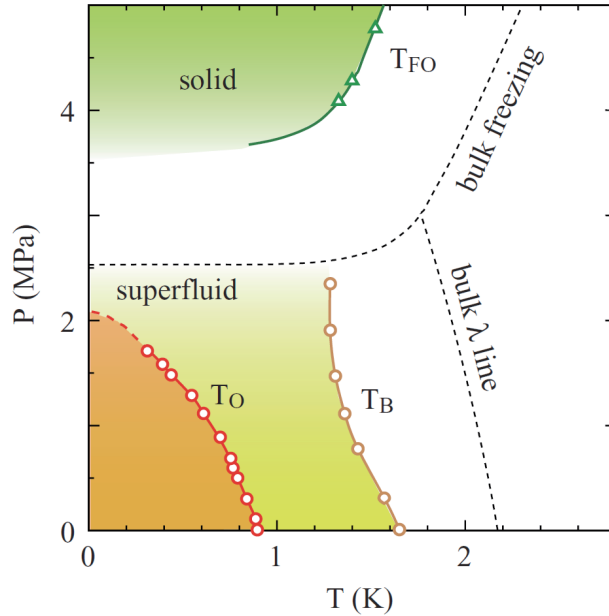


図 2.30: FSM16 中加圧下液体 ^4He の温度圧力相図 [27]. 超流動密度の急な立ち上がりを T_o , 熱容量の肩の温度を T_B , 固化が始まる温度を T_{FO} としている.

2.3.6 細孔中の固化

Taniguchi らは, 熱容量と圧力測定から細孔中 ^4He の固化の研究を行った [28]. 実験は 2.3.5 のセルが用いられ, 熱容量測定は熱パルス法で行われた. 図 2.31 に (a) 0.3 K, 3.75 MPa と (b) 0.5 K, 6.57 MPa の昇温過程と冷却過程の dP/dT を示す. 2.07 K 付近からバルク固化は始まり完了した後から細孔中の圧力変化は徐々に分かれる. 昇温過程では, 圧力はバルク固化曲線に向かってスムーズに増加する. 次に 2.31(b) より, 圧力変化をみバルク ^4He の固化完了後, 2.75 K 付近でのバルク固化曲線から分岐し始める. 冷却過程では, 6.67 MPa, 1.90 K に向かって減少する. 温度を下げていくと 1.89 K で小さなドロップがみられ, 1.81 K から減り始め, 最後には一定圧に落ち着く. このドロップの間, dP/dT の明確なピークが観測された. このピークの始まりと終わりの温度を T_{FO} , T_{FC} とした. 図 2.32 に T_{FO} , T_{FC} を温度圧力相図にプロットした. 2.80 から 3.87 MPa の間の領域では, dP/dT のピークは最低温まで観測されなかった. ここから, 細孔中の固化圧が 1 MPa 以上も上昇したことが考えられる.

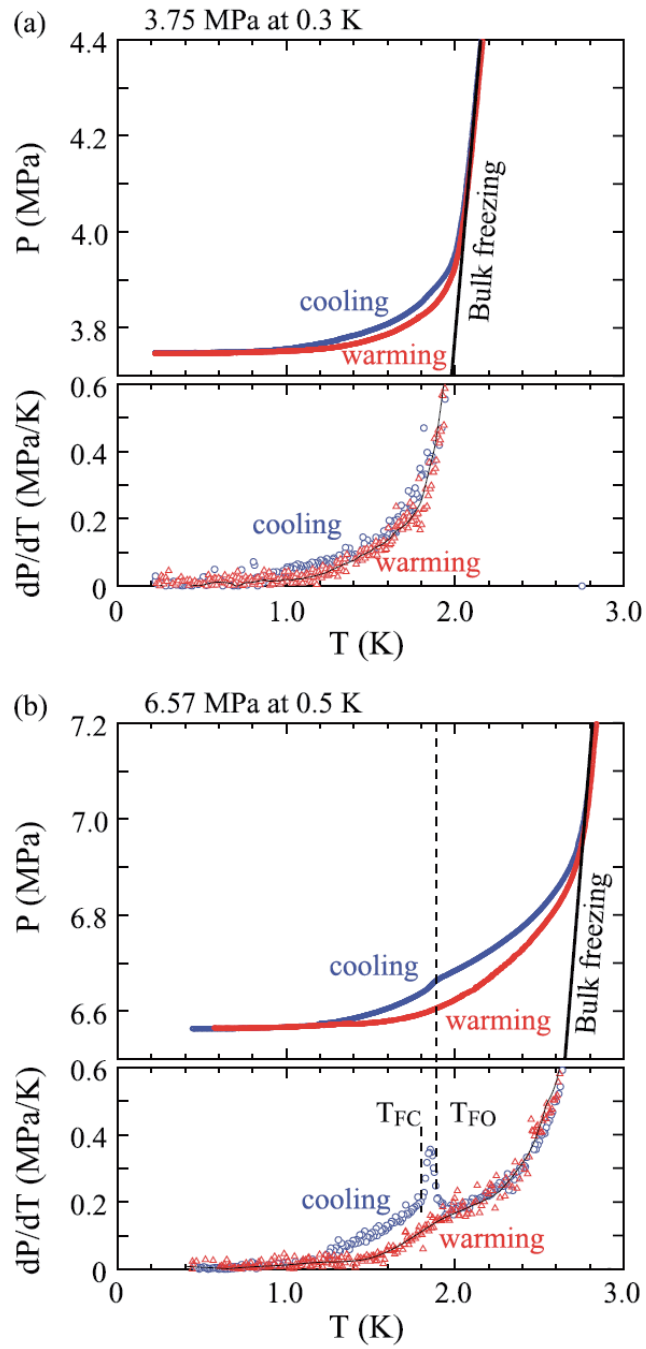


図 2.31: (a) 0.3 K, 3.75 MPa と (b) 0.5 K, 6.57 MPa の昇温過程と冷却過程の dP/dT . T_{FO} と T_{FC} は固化開始と固化完了温度を示している [28].

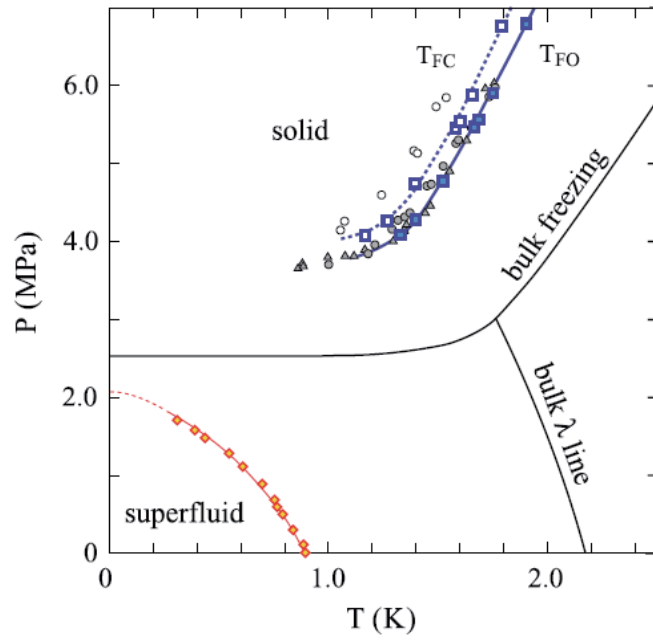


図 2.32: 固化開始と完了温度の温度圧力相図. \square : FSM(3 nm), \circ : Vycor(平均孔径 6.0 nm), \triangle : Gelsil(平均孔径 2.5 nm) [28].

第3章 実験方法

本章では測定方法の説明を中心に実験の原理について説明する。

研究で用いた試料 FSM は豊田中央研究所の Inagaki らにより合成された。2重連成ねじれ振り子測定では、1次元ナノ多孔体 FSM16，比熱測定では FSM12 を用いた。まずは、1次元ナノ多孔体 FSM の概要，各々のペレット作成と表面積測定について説明する。

次に、測定手法を述べる。従来の単一ねじれ振り子法 [33] について述べたあと、2重連成ねじれ振り子について説明する。また、熱容量測定について説明する。その後、温度制御と試料ガスの導入方法を説明する。

3.1 1次元ナノ多孔体 FSM

3.1.1 1次元ナノ多孔体 FSM の概要

FSM は豊田中央研究所の Inagaki らにより合成された。1次元ナノ多孔体 FSM の特徴として、細孔径が均一で交差しないことを挙げられる。図 3.1, 3.2 は FSM の透過電子顕微鏡写真で、孔径の揃ったハニカム構造をして、細孔に接続がないことが確認されている。

FSM はシリケートでできた多孔体で、原材料は層状カネマイト ($\text{NaHSi}_2\text{O}_5 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$) である。層状カネマイトの一層の厚さは1分子層である。pH12.3の界面活性剤であるアルキルトリメチルアンモニウム (ATMA) 塩水溶液中で、シリケートシートは図 3.3 にあるように Na^+ イオンと交換した ATMA イオンのまわりに曲げられる。そして、隣接したシリケートシート上のシラノールが縮合反応を起こし、ATMA のアルキル基の長さが半径に相当する六角形のトンネルができる。最後に大気中で焼く (550~700 °C で6時間) ことで ATMA を取り除く。FSM 孔径は ATMA のアルキル基の長さに依存している。ATMA の組成は $\text{C}_n\text{H}_{2n+1}\text{N}^+(\text{CH}_3)_3$ であり、作成時の C の個数 n により細孔径は制御される。FSM は n をつけることによって区別され、2重連成ねじれ振り子測定では $n=16$ の FSM16 (Lot No.010145)，比熱測定では $n=12$ の FSM12 (Lot No. 不明) の試料をそれぞれ用いた。

多孔質試料の細孔径は、細孔への分子吸着観測から評価する。特に、本研究の場合、 ^4He 原子数個の直径の液体の性質を調べることを目的としているため、細

孔評価法の選択は慎重にならなくてはならない。しかし、FSMの細孔径は数 nm であり、メソ孔 (2.0~50 nm) に分類されるが、スーパーマイクロ孔 (0.5~2.0 nm) に近いこともあり、評価法の選択は難しいと考えている。

一般に用いられる Berret-Joner-Halenda(BJH) 法は窒素脱着等温曲線から細孔分布を求める方法だが、2000 年以降も評価法の修正が行われている。その他、密度汎関数 (Density Functional Theory, DFT) 法は密度汎関数を用いるモンテカルロ法で計算する方法もある。

2008 年、FSMの細孔径評価は作製者の稲垣らによって上記2つの方法で行われており、その評価結果を記述する。FSM16 については、細孔径はBJH法では 2.8 nm, DFT法では 4.1 nm である。また、FSM12 については、細孔径はBJH法では 1.6 nm, DFT法では 2.3 nm である。本論文では、細孔径の決定をせず、ATMAのCの個数 n により区別することとした。

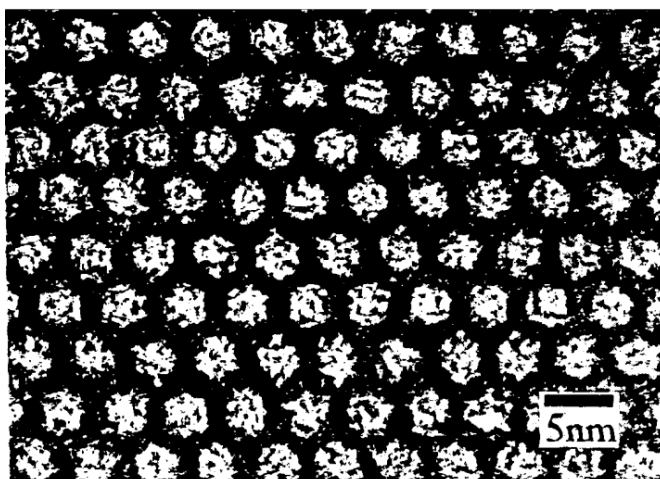


図 3.1: FSM16 の透過電子顕微鏡写真 [29].



図 3.2: FSM16 の透過電子顕微鏡写真 2 [29].

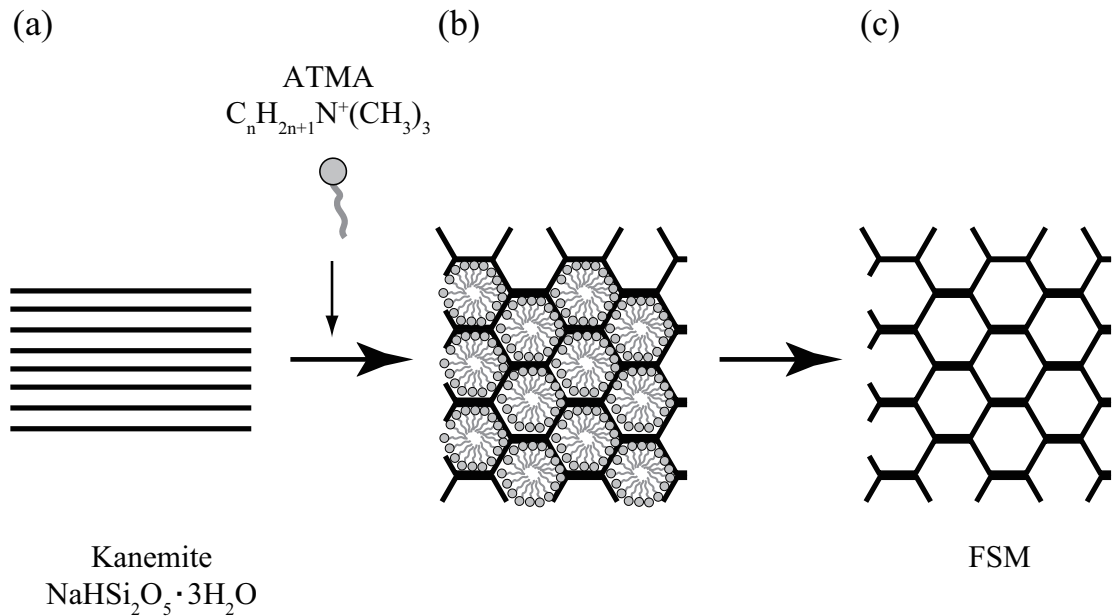


図 3.3: FSM を合成する過程の模式図. [29](a) 加工前のカネマイト. (b) カネマイトの Na^+ イオンと入れ替わった ATMA イオンがカネマイトを押し広げ六角形が作られる. (c) 界面活性剤 ATMA を取り除いて FSM が完成する.

3.1.2 ペレットの作製

2重連成ねじれ振り子測定のための FSM16 試料と、比熱測定のための FSM12 試料をペレット状に作製した. 両者の試料作製はほぼ同様の方法で行い、作製条件を表 3.1 にまとめた. FSM16 中 4He の 2重連成ねじれ振り子測定, FSM12 の比

熱測定のため、FSM 試料でペレットを作成した。まず、FSM は 120 °C で脱水した後、脱水した FSM と銀粉 (純度 99.9 % 以上, 200 メッシュ) を重量比 2:1 で攪拌した。その後、治具を用い Be-Cu で作成したキャップの中に攪拌した試料を入れた。プレスして押し固めた後 (プレス荷重 20 kgf/cm²) , 200 °C 約 3 時間水素雰囲気中で焼結した。水素は銀の還元剤となり、焼結を促進させるはたらきがある。治具内の配置は図に示す。

FSM16 の試料について、焼結後のペレットの重量は 0.20357 g であった。FSM12 の試料については、試料ガス導入用のポートを避ける様にスペーサーを入れた。焼結後、治具からペレットを取り出す際、可動ダイヤフラムに接する面に凹凸ができてしまったが、紙ヤスリで平らにした。ペレットと Be-Cu パーツを合わせて、3.8801 g であった。時効処理後 Be-Cu パーツは 3.5217 g であったので、ペレットの重量は 0.3584 g となる。

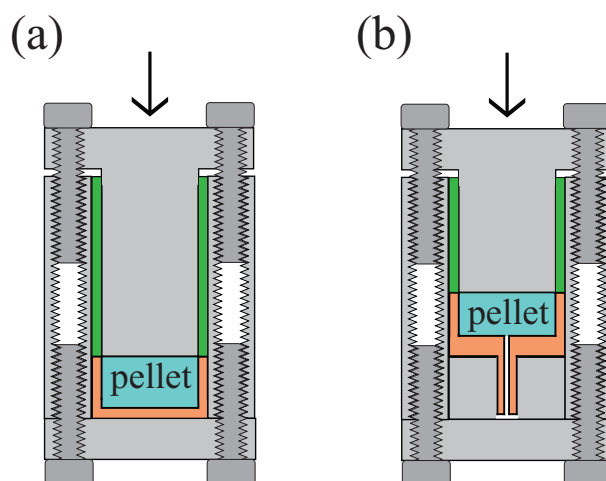


図 3.4: (a) 2 重連成ねじれ振り子測定用 FSM16 ペレット, (b) 比熱測定用 FSM12 ペレットのプレス・焼結治具のセットアップ。図中の緑部分はテフロンをサポート部品。

3.1.3 表面積評価

試料評価として、窒素吸着圧力測定, ⁴He 吸着圧力測定を行った。表面積は、Brunauer-Emmett-Teller(BET) 法 [30] を用いて行った。

BET 理論による比表面積の見積もり

BET 理論 [30] は、吸着相互作用エネルギーが Langmuir 理論 [31] と比較して比較的小さい物理吸着に適用される。BET 理論では Langmuir 理論と同様に吸着サ

表 3.1: FSM16, FSM12 のペレット作成時データ

	FSM16	FSM12
脱水時間	-	16 時間, 10 時間
脱水温度	120 °C	120 °C
脱水時到達圧力	-	2.6×10^{-5} , 3.0×10^{-5}
重量比 (FSM:Ag)	0.1505g:0.0753g	0.3687g:0.1867g
プレス荷重	20 kgf/cm ²	20 kgf/cm ²
焼結時間	3 時間	3.5 時間
焼結温度	200 °C	200 °C

イトを仮定するが、必ずしも特異的な吸着サイトではない。そのため、吸着質は固体表面をほぼ覆うことが期待され、単分子層吸着量と吸着質の分子占有面積から固体の比表面積 A_S を求めることができる。「比」表面積は、吸着質分子の占有面積と比べるという意味で、本評価では窒素分子の占有面積を基準とする。

比表面積 A_S は次のように書く事が出来る。

$$A_S = \frac{v_m N a_m}{m M} \quad (3.1.1)$$

ここで、 m は試料自体の質量、 v_m は試料に吸着した吸着質の単原子層吸着量、 N はアボガドロ数、 a_m は吸着質分子が試料表面で占める面積、つまり分子占有断面面積で M は吸着質の分子量である。

表面積評価のためには分子占有断面面積 a_m が重要で、正確な表面積を測定するためには、無極性でほぼ球形の希ガスや小さな水素分子などを使う事が望ましいとされるが、高純度のガスを用意するのが難しい。一般には窒素分子が用いられていることが多い。今回の評価で使用した吸着質も窒素分子であり、分子占有断面面積を 0.162 nm^2 とされている [32].

表面積の測定

ここではペレットの窒素吸着圧力の測定法を具体的に述べる。窒素分子の吸着を沸点 (77 K) で行い、試料を格納した測定セルは貯蔵された液体窒素内にいれる。

測定で用いたガス操作系 (Gas Handling System, GHS) の概要を図 3.5 に示す。GHS は配管と継ぎ手、バルブで構成され、あらかじめ標準とする配管内の体積を見積もり、バルブ操作により試料に対し定量の気体を導入することができる。図中の赤ラインは圧力計も含めた標準体積 V_{ST} を表している。バルブ 1 から V_{ST} へ純粋な N_2 ガスが供給され、その圧力から気体のモル量を求めた。その後、バルブ 2 を開けると、気体が液体窒素沸点まで冷やされた試料へ吸着される。この行程

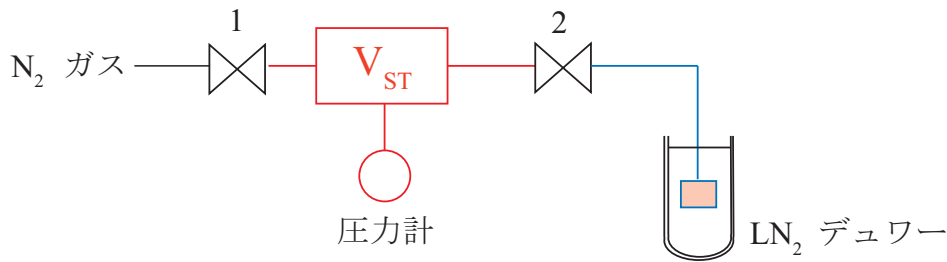


図 3.5: BET 用ガス操作系の概要.

を繰り返すことで、気体の導入量と吸着後の平衡圧力の関係を測定した。ただし、図中の青ラインで示したように、バルブ2から試料表面に至るまでの空間（死体積）があり、考慮した。

また、測定セルを入れた液体窒素の液体量は一定に保つようにした。

次に、気体導入量(吸着量)と吸着圧力の関係から比表面積を求めるため、次式にのりとした BET プロットを行う。

$$\frac{P}{v(P - P_0)} = \frac{1}{v_m c} + \left(\frac{c - 1}{v_m c}\right) \left(\frac{P}{P_0}\right) \quad (3.1.2)$$

v は全吸着量で、縦軸 $P/v(P_0 - P)$ 、飽和蒸気圧を P_0 、横軸を相対圧 P/P_0 としてプロットし、切片と勾配から試料の表面積を求めた。ただし、測定では導入量 n が v と等しいとしている。

FSM16 の表面積測定の結果

図 3.6 に 2 重連成ねじれ振り子用 FSM16 ペレットに対する吸着等温線を示す。等温線は低圧部では緩やかに上昇し 0.3 付近以降急に立ち上がり、高圧部で平らな部分が現れる。 P/P_0 が 0.4 以上の単調な上昇は、FSM16 細孔内が窒素分子でほぼ埋まり、粉末間のオープンスペースに窒素が吸着していると考えられる。

図 3.7 は BET プロットである。BET プロットで、原点付近から線形増加する領域でフィッティングできるので、フィッティング範囲は $P/P_0 = 0.08 \sim 0.22$ とした。式 (3.1.2) より、

$$\frac{c - 1}{v_m c} = 1.08 \text{mol}^{-1} \quad (3.1.3)$$

$$\frac{1}{v_m c} = 0.0103 \text{mol}^{-1} \quad (3.1.4)$$

となるので、一層吸着量 $v_m = 0.920 \text{ mmol}$ を得た。窒素の吸着断面積 $16.2 \times 10^{-20} \text{ m}^2$ を用いると、今回の FSM16 ペレットの表面積は 90.0 m^2 であった。

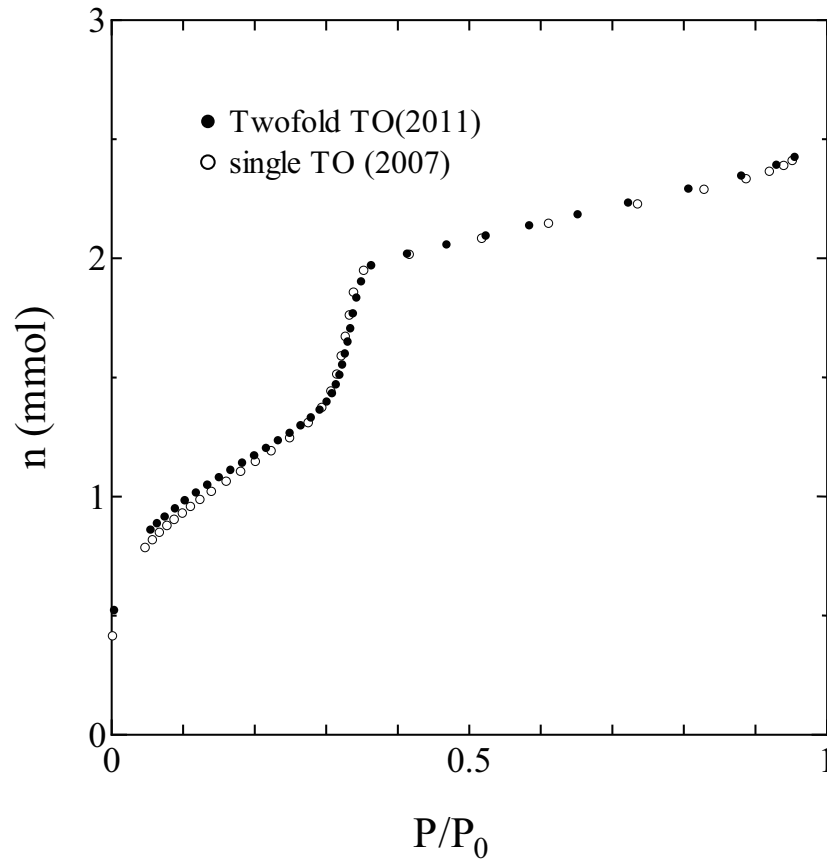


図 3.6: FSM16 の窒素等温吸着線. 本研究で用いる 2 重連成ねじれ振り子用 FSM16 ペレットの測定結果. 縦軸は飽和蒸気圧に対する相対圧力で, 横軸は導入量である. 2007 年に行われた単振り子の結果を 0.82 倍した結果も示す.

FSM12 の表面積測定の結果

図 3.8 に FSM12 ペレットに対する吸着等温線を示す. 毛細管凝縮が $P/P_0=0.15$ 付近に観測され, $P/P_0=0.3$ 程度で再び単調に等温線は上昇している.

図 3.9 のように, BET フィッティング範囲は $P/P_0 = 0.058 \sim 0.011$ を行った. 式 (3.1.2) より,

$$\frac{c-1}{v_m c} = 0.0578 \text{ mol}^{-1} \quad (3.1.5)$$

$$\frac{1}{v_m c} = 0.00936 \text{ mol}^{-1} \quad (3.1.6)$$

となるので, 一層吸着量 $v_m = 1.70 \text{ mmol}$ を得た. 窒素の吸着断面積 $16.2 \times 10^{-20} \text{ m}^2$ を用いると, 今回の FSM-16 ペレットの表面積は 166 m^2 であった. この表面積は,

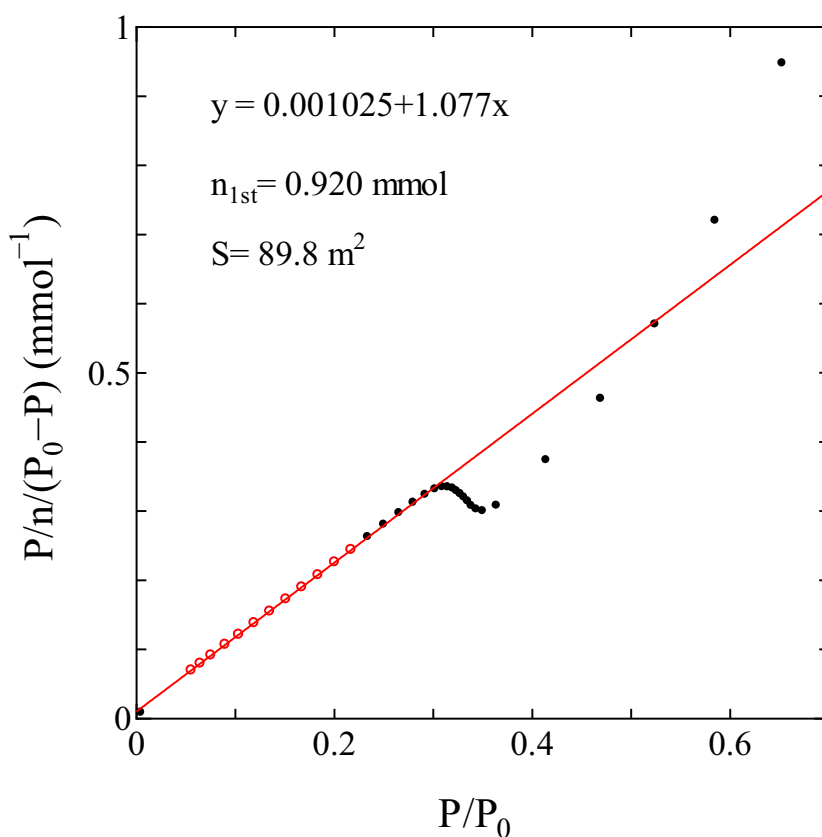


図 3.7: FSM-16 の BET プロット. フィッティング範囲は $P/P_0 = 0.08 \sim 0.22$ で、赤丸で示した.

2006 年の孔径 2.2 nm のねじれ振り子測定で使用したペレットの表面積 91.0 m² の 1.86 倍である. 一方, ペレットの重量は 1.83 倍で, 表面積とペレットの重量がほぼ比例している.

3.2 ねじれ振り子法による超流動密度の測定

本実験では, 2 連ねじれ振り子を用いて超流動密度を測定した. まず, ねじれ振り子の固有周波数を示し, ねじれ振り子による超流動の測定について述べる. 最後に, 測定で用いた, 2 連ねじれ振り子について説明する.

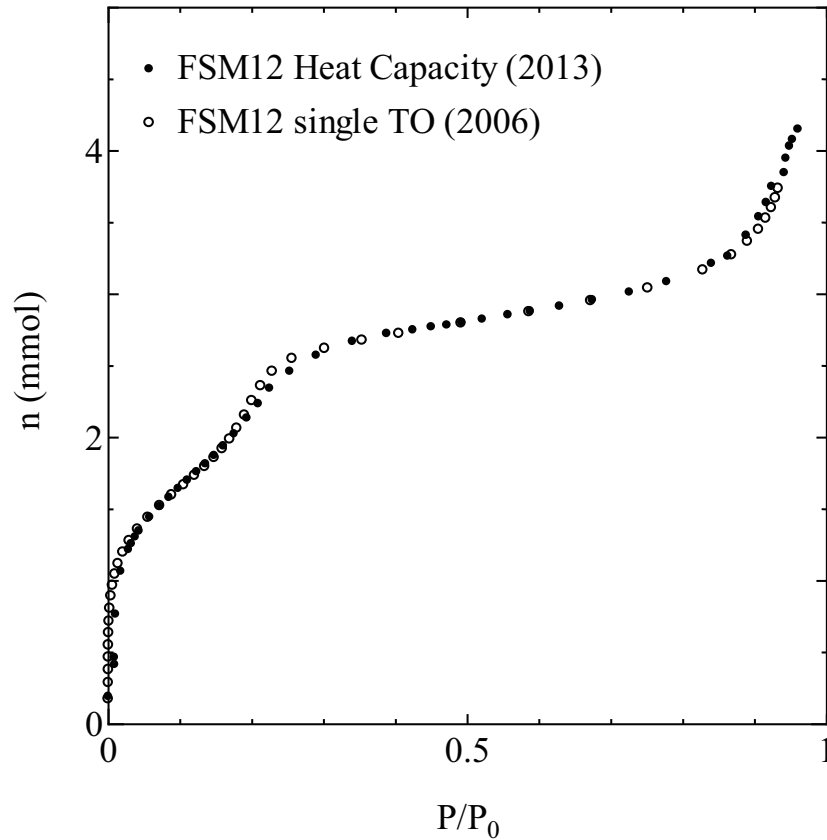


図 3.8: FSM-12 の窒素等温吸着線.

3.2.1 ねじれ振り子の共振周波数

ねじれ振り子は、円柱形のロッドの下部に慣性モーメント I のおもりがついている。ねじれ振り子の共振周波数を求めるため、円柱のねじれ角 θ 、ロッドに作用する力のモーメント N を用ると、運動方程式は以下になる。

$$I \frac{d^2\theta}{dt^2} = N \quad (3.2.1)$$

図 3.10 のように長さ l 、半径 a 、ずれ弾性率 G のねじれロッドの上端を固定し、下端を θ だけねじった時に生じる力のモーメントを計算する。図 3.10 のようにねじれロッドの内部の半径 r 、厚さ dr の薄い円管を考える。これを θ だけねじる事により生じる母線の傾きを ϕ とする。 $r\theta \ll l$ の時、 ϕ は次のように表される。

$$\phi \simeq \sin \phi \simeq \tan \phi = \frac{r\theta}{l} \quad (3.2.2)$$

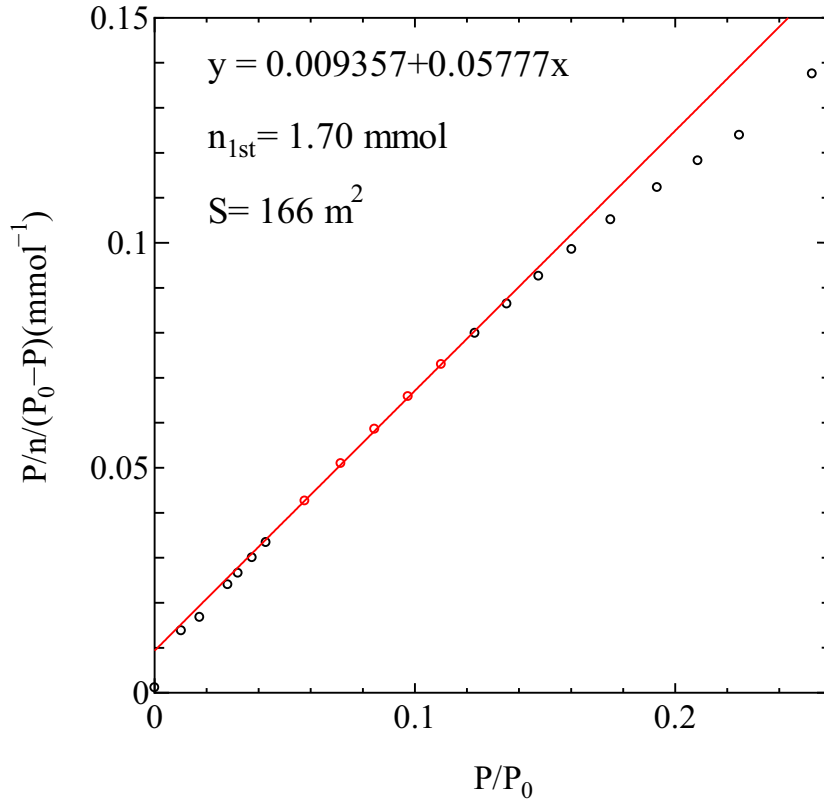


図 3.9: FSM-12 の BET プロット. 直線はデータに対して, 線形 2 乗法を用いて決定したものである.

また, 底面における接線方向のずれの応力は, この面に働く力を dF とすれば, $dF/2\pi r dr$ であるから, 断面積を S とするとずれ弾性率はその定義から

$$G \equiv \frac{F/S}{\phi} = \frac{dF/2\pi r dr}{r\theta/l} \quad (3.2.3)$$

となる. この式を変形して, 底面に働く力は

$$dF = 2\pi G\theta r^2 dr/l \quad (3.2.4)$$

となる. 故に, 円管に働くねじりの力によるモーメントは復元力なので,

$$dN = -rdF = -\frac{2\pi G\theta r^3 dr}{l} \quad (3.2.5)$$

となる. よって, 半径 a のねじれロッドに作用する力のモーメントは

$$N = -\frac{2\pi G\theta}{l} \int_0^a r^3 dr = -\frac{\pi G a^4}{2l} \theta \equiv -\kappa\theta \quad (3.2.6)$$

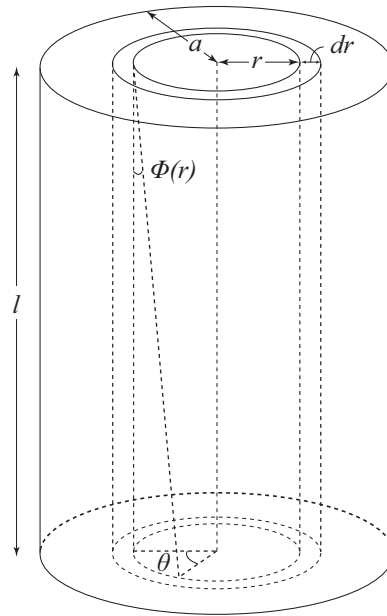


図 3.10: 円柱のねじれ

となる.

式 (3.2.1) の運動方程式を解くと, ねじれ振り子の共振周波数は,

$$f = \left(\frac{1}{2\pi} \right) \sqrt{\frac{\kappa}{I}} \quad (3.2.7)$$

となる.¹

ねじれ振り子の共振周波数はねじれ振り子に用いる材質や, 寸法に依存する量である. ねじれ振り子には, ねじれモードと図 3.11 に示すようなフロッピーモードというたわみによる振動が存在する. 実際に実験で測定を行うのは, ねじれモードである. フロッピーモードはねじれ振動とカップルしないように, より高い周波数になるように設計をする. 具体的にはねじれロッドの長さを短くすることで, フロッピーモードの周波数を上げる事が出来る. 高い周波数には様々な共振モードが存在するため, 一般的には 10 kHz 以上でねじれ振動をきれいに起こすのは難しい.

3.2.2 ねじれ振り子による超流動密度の測定

ねじれ振り子を用いた ^4He の超流動密度の検出について述べる. ^4He の実験では, ^4He が電荷もスピンも持たないので, 測定方法は中性子散乱などの特殊な方

¹円柱の中心軸に対する慣性モーメント I は $I = \pi \rho r^4 h / 2$ となる. ここで, ρ は密度, r は半径, h は円柱の高さである.

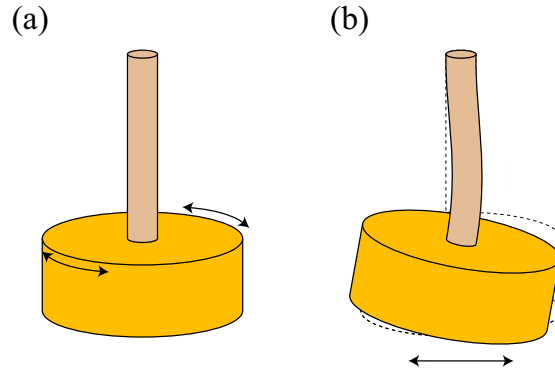


図 3.11: (a) ねじれモードと (b) フロッピーモード.

法以外には熱的，力学的なものに限られてきた．力学的方法で有効なのがねじれ振り子である．1940年代，Andronikashviliらはねじれ振り子を使って初めて2流体の常流動密度 ρ_n を直接測定した [5]．当時のねじれ振り子は長い針金につるした円盤を液体 He に浸し，針金に取り付けた鏡に光を当てて振動の周期と振幅を読み取るものだった．1970年代には，より感度の良いねじれ振り子が Reppy らによって開発された [34]．Reppy らは強く，高い Q 値を得るためにねじれロッドに密封型のセルを取り付け，ロッドの中心の穴から He を導入した．また，セルを取り付けた電極を用いて電氣的にねじれ振り子を駆動させて強制振動を起こした．この方法は超流動の測定を感度よく，安定度が高いものにした．

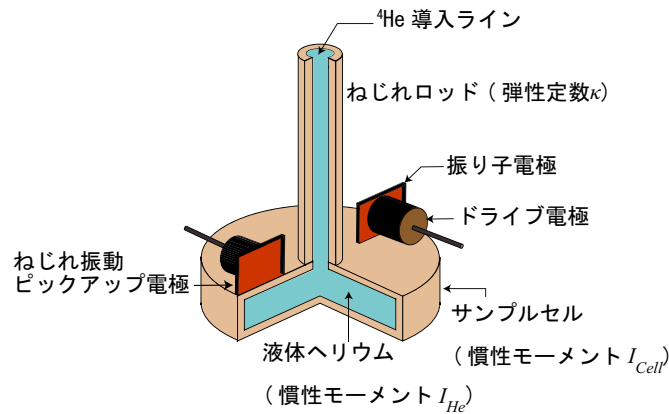


図 3.12: ねじれ振り子の概略図.

図 3.12 のようなねじれ振り子を考える．ただし，今は減衰の効果を無視してい

る. このねじれ振り子のねじれ振動の固有周波数は

$$f = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{\kappa}{I_{\text{cell}}}} \quad (3.2.8)$$

と書ける. ここで, ロッドのねじれ弾性定数 κ , 円筒セルの慣性モーメントは I_{cell} とする. いま, κ の温度変化は小さく一定と考えることができる.

ここで, セル内に ^4He を満たし, 超流動転移温度以下で, 全液体に対する超流動密度の割合 ρ_s/ρ が増加するための周波数の上昇を示す. セルに導入した ^4He の慣性モーメント I_{He} とすると, 超流動転移点以下では, 超流動成分は I_{He} に寄与しなくなり, I_{He} の減少として観測される. $I_{\text{cell}} \gg I_{\text{He}}$ のとき, 1次の近似で以下になる.

$$\Delta f(T) = \frac{1}{2\pi} \left(\sqrt{\frac{\kappa}{I_{\text{cell}} + I_{\text{He}}(1 - \rho_s(T)/\rho)}} - \sqrt{\frac{\kappa}{I_{\text{cell}} + I_{\text{He}}}} \right) \quad (3.2.9)$$

$$\simeq \frac{f_{\text{cell}}}{2} \frac{I_{\text{He}}}{I_{\text{cell}}} \frac{\rho_s(T)}{\rho} \quad (3.2.10)$$

ただし,

$$f_{\text{Cell}} \equiv \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{\kappa}{I_{\text{Cell}}}} \quad (3.2.11)$$

である.

3.2.3 2重連成ねじれ振り子

本実験で用いた2重連成ねじれ振り子の共振周波数や検出法について述べる.

共振周波数

ここでは, 2重連成ねじれ振り子は, 図3.14の簡易モデルのように, 単一ねじれ振り子のおもり下部にロッドを介してもう1つのおもりを持つ. 2つのおもりの振動の位相によって, 2つのねじれモードをもち, 同一の試料に対し2つの共振周波数で測定することが可能となる. 以下に, 2つの共振周波数を求める.

慣性モーメント $I_{1(2)}$ を, ねじれ弾性定数を $\kappa_{1(2)}$, 振動角 $\theta_{1(2)}$ とすると, 以下の運動方程式が得られる.

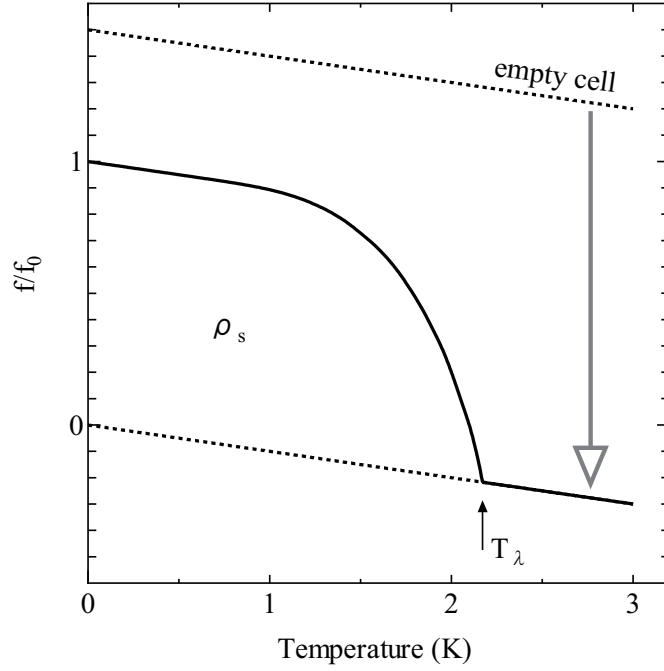


図 3.13: 超流動転移に伴うねじれ振りの周波数の上昇.

$$I_1 \frac{d^2 \theta_1}{dt^2} = -\kappa_1 \theta_1 - \kappa_2 (\theta_1 - \theta_2) \quad (3.2.12)$$

$$I_2 \frac{d^2 \theta_2}{dt^2} = -\kappa_2 (\theta_2 - \theta_1) \quad (3.2.13)$$

ここで,

$$\theta_1 = \alpha \exp(i\omega t) \quad (3.2.14)$$

$$\theta_2 = \beta \exp\{i(\omega t + \theta_0)\} \quad (3.2.15)$$

とおき, 計算すると, 共振周波数は, $c_1 = I_1/I_2$, $c_2 = \kappa_1/\kappa_2$ として,

$$f = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{\kappa_2}{2I_1}} \sqrt{c_1 + c_2 + 1 \pm \sqrt{(c_1 + c_2 + 1)^2 - 4c_1 c_2}} \quad (3.2.16)$$

となる. 式 (3.1.17) の根号内第 2 項の符号が正のときは 2 つのおもりが同位相にねじれ振動する高周波 f_h モードで, 逆位相では低周波 f_l モードとなる.

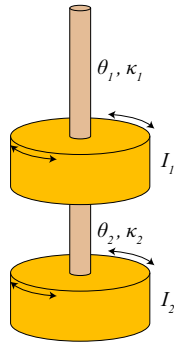


図 3.14: 2重練成ねじれ振り子の慣性モーメント $I_{1(2)}$ とねじれ弾性定数 $\kappa_{1(2)}$

セットアップ

図 3.15 が 2 連ねじれ振り子の概略図である。2 重連成ねじれ振り子の 1 つめの重りは台座と試料の間の銅のおもりで、2 つめの重りはペレットが入った容器である。駆動用電極とピックアップ用電極は 2 つめのおもりの上に Stycast1266 を用いて接着されている。

挿入図にあるように、ねじれ振り子の台座は、冷凍機架台のゆれを軽減するためのメカニカルフィルターも兼ねている。台座は銅のフランジを介して混合器下部へ取り付けられる。試料ガスの導入用のキャピラリーは混合器に熱接触され、フランジにはんだ付けした。導入された試料ガスは台座内のラインからねじれ振り子ロッド内を通り、ねじれ振り子のペレットへ至る。気密を保つためフランジと台座間、ねじれ振り子と台座間はインジウムシールされている。測定時の温度コントロールに用いた温度計は Scientific Instruments 製の酸化ルテニウム温度計 RO600(ボビンパッケージタイプ)、ヒーターはマンガン線をボビンのに巻き付けたものを用いた。

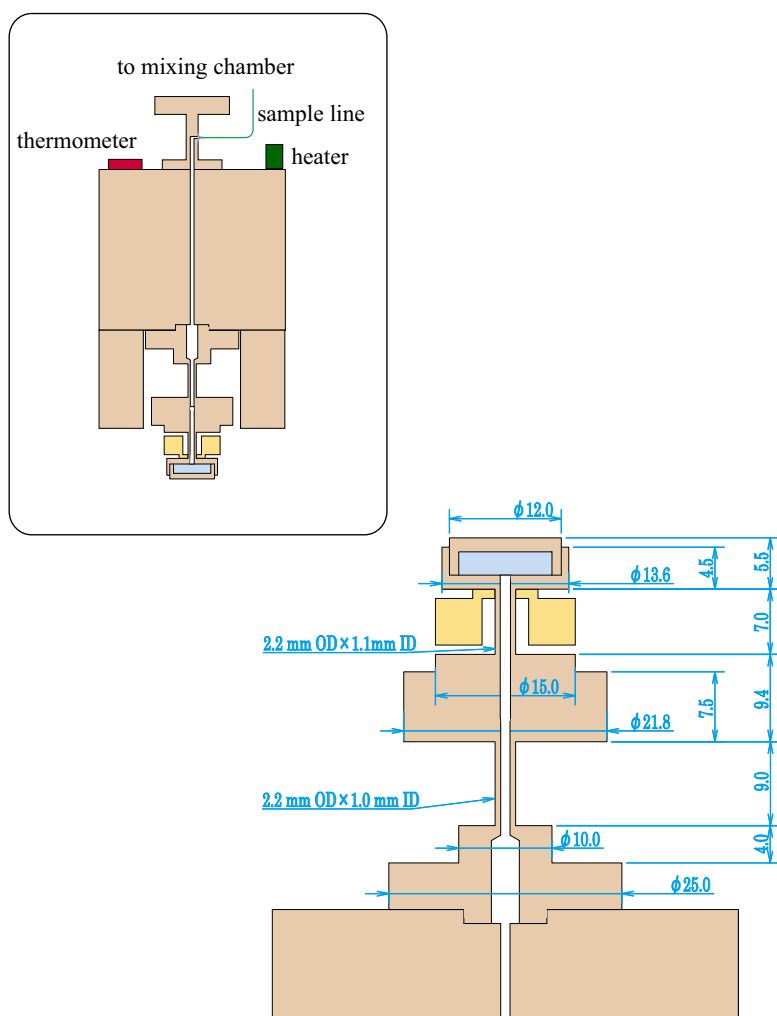


図 3.15: 連成ねじれ振り子の概略図. 挿入図は冷凍機へのセットアップ.

ブロックダイアグラムと振動振幅

ねじれ振り子の測定系のブロックダイアグラムを図 3.16 に示す.

ねじれ振り子の励起は、励起側の電極に高圧のバイアスを加え、そこに交流電圧を重ねることによって行われる. 励起側の電極とねじれ振り子羽根電極との間に電圧が加えられると静電気力が働き、互いに引き合う. このように高圧バイアスと交流電圧が加えられると交流電圧の周期で引き合う力が変化する. ここで交流電圧の周期がねじれ振り子の共振周波数に等しい時共振が起こる. このとき検出側では電極とねじれ振り子の間に高圧のバイアスがかかることで形成したコンデンサーの容量がねじれ振り子が振動することで変化する. 検出された信号は、ロックインアンプで検波する. 検波の際は励起信号と同位相の信号を

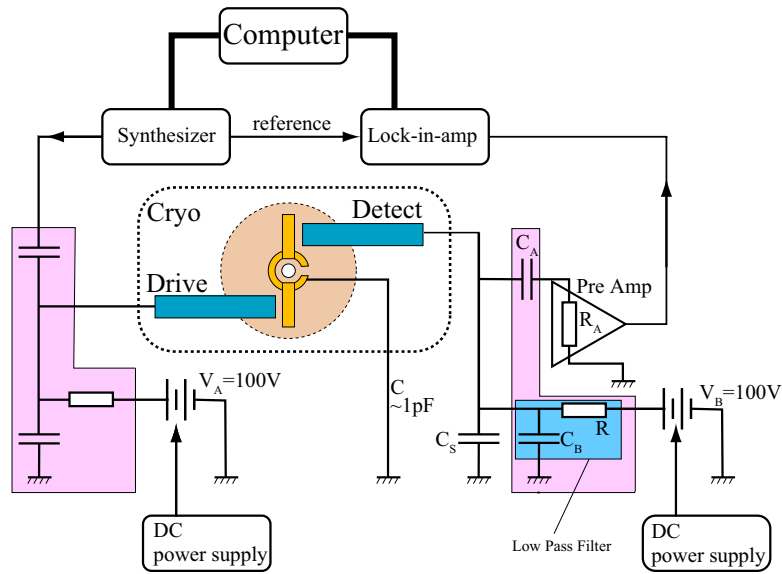


図 3.16: ねじれ振り子測定のプロックダイアグラム

参照信号とする. 共振周波数の温度変化をフィードバック回路によって自動的に追尾し, 一定電圧でドライブすることで出力電圧 (振り子の振幅) を Q 値の変化に読み替えることができる. 大きな抵抗 R と接地したコンデンサーを介し, ねじれ振り子がショートしたときに大電流が流れるのを防ぐローパスフィルタを作成する. ねじれ振り子の振幅は微少であるため, 本実験では電流電圧変換プリアンプ (NF 社製 LI-76) を用いてゲイン 10^6 で増幅した. 測定での出力電圧 V_{out} は, 電流アンプのゲインを G_I , 電極のギャップ間隔を d , ねじれ振り子の振幅を δ , 電極の容量を C とすると,

$$\begin{aligned}
 V_{out} &= G_I |I_A| \\
 &= G_I \omega C V_B \frac{\delta}{d} \\
 &\quad \times \left\{ \left(\frac{C + C_B + C_S}{C_A} + 1 \right)^2 + (\omega R_A (C + C_B + C_S))^2 \right\}^{-\frac{1}{2}} \quad (3.2.17)
 \end{aligned}$$

となる. 括弧内は周波数を 2 kHz, C を 1 pF とすれば 1.000006 となり, ケーブルの浮遊容量 C_S の影響はほとんどない. ただし, 出力電圧や振り子の振幅は周波数に依存する. 今, 括弧内が 1 とし, ねじれ振り子の容量を $C = \epsilon_0 S/d$ で表すと, ねじれ振り子の振幅は,

$$\delta \sim \frac{V_{out} d^2}{G_I \omega V_B \epsilon_0 S}$$

となる。

f_h モードの実測共振周波数が 0.1 MPa の ^4He が導入されている条件で 2055.7 Hz, 出力電圧が $130 \mu\text{V}$ であった。また f_l モードでは, 同条件で実測共振周波数は 504.9 Hz, 出力電圧は $209 \mu\text{V}$ であった。電極の直径が 4 mm, 極板間距離 $100 \mu\text{m}$ とすると, 振幅は f_h モードでは 5 nm, f_l モードでは 30 nm, と見積もれる。ただし, 実際の電極の容量は測っていないので, 極板間距離より見積もったことにより, 数倍程度の不確かさがある。

3.3 熱容量測定・圧力測定

本実験で用いる熱容量測定セルは, 導入 ^4He の圧力も測定できる。以下では, 圧力計測と熱容量計測の詳細について述べる。

3.3.1 極低温圧力計の原理

極低温下での圧力測定で用いる容量型歪み圧力計はに Straty ら [35] によって考案され, Vycor などの多孔質ガラス内 ^4He の固化圧測定をはじめとして広く使われている [13]。圧力は, およそ 1 mm の厚さの金属製の薄膜 (ダイヤフラム) の弾性変形を検出する原理である。ダイヤフラムには絶縁された平板電極が取り付けられており, これと対向する位置に固定電極を配置する。測定セルの上部の壁がダイヤフラムを兼ねており, セルが加圧されるとダイヤフラムがひずみ, 電極間の距離が小さくなる。電極間の静電容量を計測することでダイヤフラムに加えられた圧力がわかる。

ダイヤフラムの加圧によるたわみを図 3.17 のようにモデル化する。圧力 P に対するダイヤフラムの垂直方向の変位 y は, ダイヤフラムの半径, 厚さ, ヤング率, ポアッソン比をそれぞれ r_d, t, E, σ とすると,

$$y = \frac{3(1 - \sigma^2)r_d^4 P}{16Et^3} \quad (3.3.1)$$

で表される。

一方, 最大応力 η は,

$$\eta = \frac{3r_d^2 P}{4t^2} \quad (3.3.2)$$

となる。本実験では, r_d は 5×10^{-3} m, t は 1.1×10^{-3} m, 硬化処理後のベリリウム銅 (Be:2at.%) の E は 2.7×10^{11} N/m², σ は 0.355 である。

本実験での最大加圧を 70 気圧と設定した．真空から 70 MPa の加圧によるダイヤフラムの変位は $2\ \mu\text{m}$ 程度である．また，7 MPa 加圧時の最大応力は式 3.3.2 より， $0.78 \times 10^8\ \text{N/m}^2$ となる．ベリリウム銅の降伏応力 S_y は $12 \times 10^8\ \text{N/m}^2$ であるから，非線形性を問題にしなくてよい圧力領域となるよう設計してある．

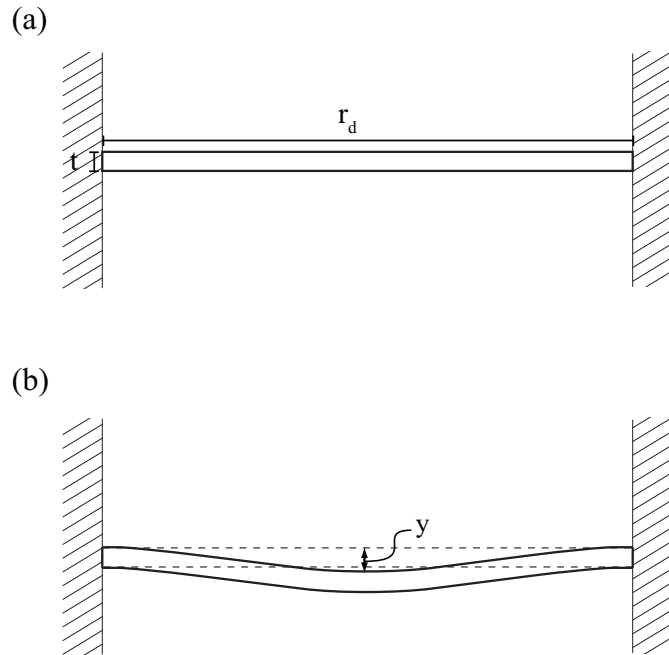


図 3.17: (a) 加圧前のダイヤフラムと (b) 加圧後のたわみと変位．

3.3.2 実験セルとセットアップ

実験セル概要

熱容量測定・圧力測定セルは図 3.18 のように，温度ステージ下の輻射熱シールドの中に配置した．温度ステージは混合器と弱く熱リンクがとってある．測定セルは FSM12 のペレットが容器内に配置され，容器の一部がダイヤフラムとなっており，ペレットに導入する ^4He の圧力が測定できる．測定のセルは糸で宙づりにされている．熱容量測定のために，セルの下部に RuO_2 温度センサー (RX-102A-BR)，Cernox 温度センサー (CX-1050-SD)，上部にヒーターを取り付けた．2つの温度センサーはたばこ紙を 1 枚挟んでワニスでセル底面に接着されている．ヒーターは共和電業製の KFJ 低温用箔ひずみゲージ ($120\ \Omega$) を用いて，ワニスで接着されている．電極，温度センサー，ヒーターの配線は NbTi 超電導線 (フィラメント径が $0.062\ \text{mm}$ ，線径 $0.100\ \text{mm}$) を用いた．超電導材料は，転移点以下で熱伝導率が

小さくなり、配線からの熱伝導を断つことができる。セルと温度ステージの熱リンク間の超電導線の一部はNbTi線のみしておく。絶縁被膜は被服剥離溶剤を、銅クラッドは硝酸を用いてそれぞれ剥離した。セルから出た配線は温度ステージに熱接触させたあと、同軸ケーブルに切替えられ、混合器と熱リンクをとっている。試料ガスを導入するキャピラリーは混合機に熱接触させた後、1段目のVycorスーパーリークを介し、輻射熱シールド上部のステージに熱接触させる。その後、2段目のVycorスーパーリークを介し、セルへ配管されている。混合器以降のキャピラリーは外径 $\phi 0.4$ mm 内径 $\phi 0.1$ mmを用い、特に2段目のVycorスーパーリークからセルへは長さが約1.5 mとして、できるだけ熱流入を少なくするセットアップとした。

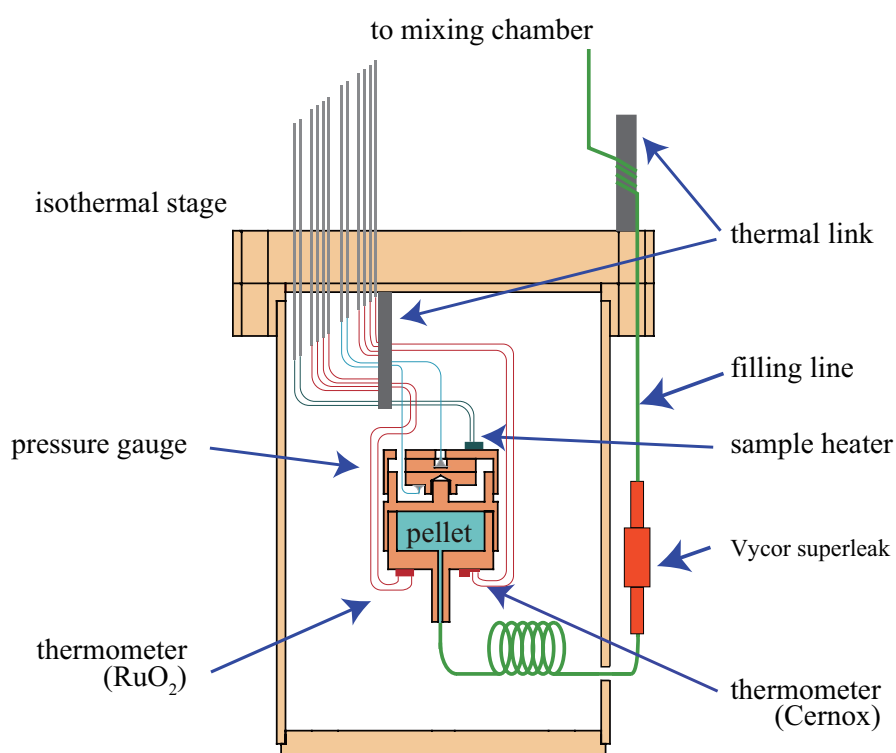


図 3.18: 熱容量圧力測定セルの全体図.

温度計の比較

本実験では、セル内の ^4He は FSM12 細孔中以外に、細孔外に液体 ^4He が存在し、その寄与を差し引く必要がある。細孔外 ^4He の大半は FSM 粉末間やペレットと銅容器間のバルク ^4He であると考えられ、 T_λ 付近での熱容量を正確に測定し、バルクのコル数を見積もる。そのため、2 K 付近で感度の良い Cernox 温度計を用いた。ただし、Cernox 温度計の抵抗は 1 K 以下では抵抗値が発散し、熱容量が測定できない。そこで、1 K 以下でも使用可能な RuO_2 温度計も合わせて使用する事とした。

実験で用いる RuO_2 温度計と Cernox 温度計の温度計の概略図を図 3.19 に示す。どちらの温度計も、セルとの温度差を少なくするために、極力小さいパッケージを選ぶ必要がある。 RuO_2 温度計は、 RuO_2 ベアチップに銀パラジウム電極が付いたタイプを使用した。電極と超電導線は、藤倉化成製のドータイト (D-753) を用いて接着した。このため、超電導線の接着部は被服剥離剤を用いて被服を剥ぎ、銅クラッドを出した。Cernox 温度計は、センサ自体は 0.2 mm の薄膜の抵抗温度計で取り扱いが難しい。そのため、今回は薄膜センサが微小空間にパッケージされたハーメチックセラミックタイプを使用した。アルミナボディーの中に、サファイヤ基板上に貼り付けられた薄膜センサが取り付けられた構造で、薄膜センサからのリード線はボディーの端子に接続されている。ボディーの端子からはあらかじめ金メッキされた銅線がはんだ付けされている。銅線と超電導線をはんだ付けして温度ステージの熱リンクに接続した。図 3.20 のように、実測の温度計感度を比較する。2 K 付近で Cernox は RuO_2 より感度が良い。

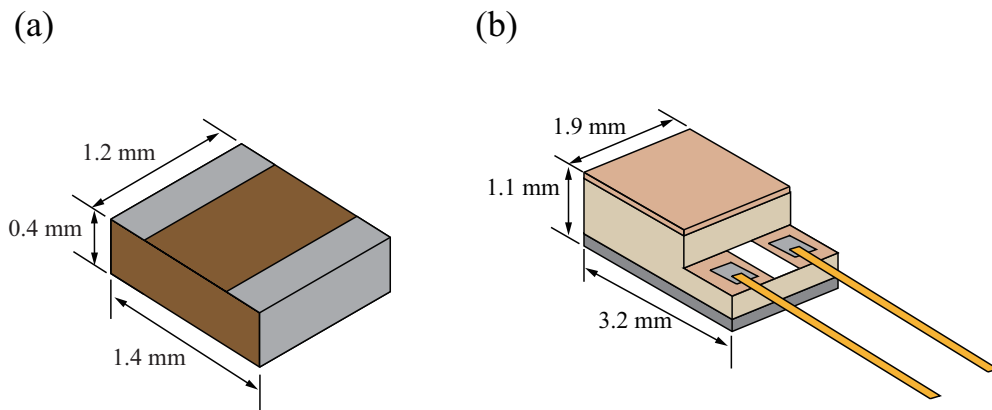


図 3.19: (a) RuO_2 温度計と (b) Cernox 温度計の温度計概略図と寸法。

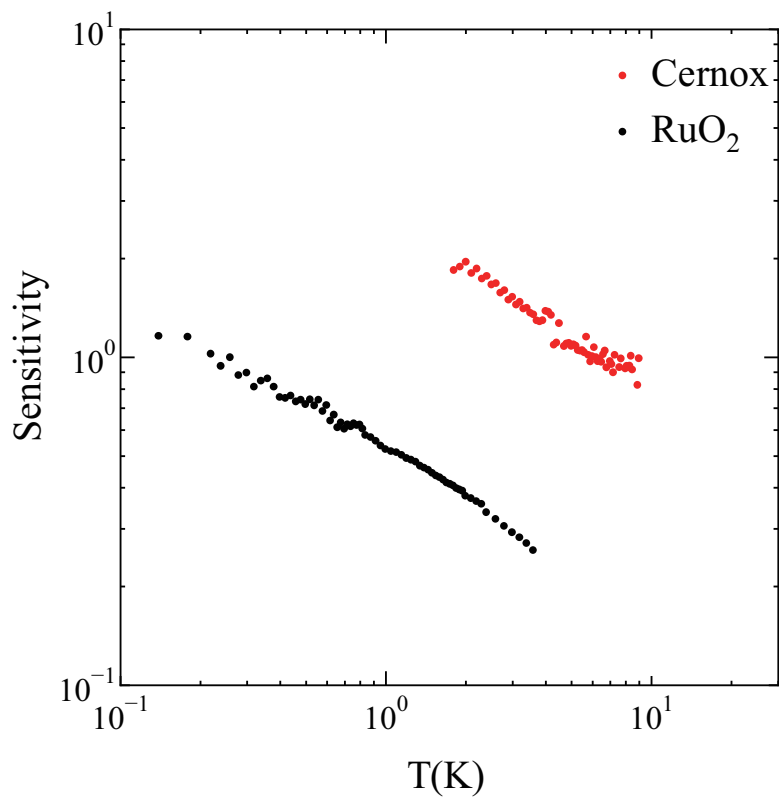


図 3.20: Cernox 温度計と RuO₂ 温度計の各温度における感度比較. 縦軸は $(T/R)(dR/dT)$ で, 無次元感度である.

実験セル作製

実験セルの作製課程を図 3.21 にまとめた。ペレットを納める容器は低温で漏れないように作製し、平行電極は目的の圧力を計測できる極板間距離にしなければならない。

測定セル部品は全てベリリウム銅製で、工作後約 300 °C 2 時間時効処理を行った。効果処理後のペレットが入る部品は 3.5217 g, ダイアフラム部品は 2.6014 g 電極を固定するキャップ部品は 1.2602 g であった。超電導線は NbTi 製で、フィラメント径が 0.062 mm, 線径 0.100 mm のものを使用した。以下の手順 (図 3.21 参照) でペレットを容器内に作製した。

1. ペレットとダイアフラムとの接触面は、紙ヤスリで容器ごと研磨し平坦にした。
2. ダイアフラム部品とペレットの接着は、Stycast1266 を用いた。気密を保つために隙間なく接着すること、ペレットとダイアフラムとの接触面を汚染しないことに注意した。
3. 平板電極の電極面はラッピングペーパーで研磨した。可動電極 (図中下部) と固定電極 (図中上部) に NbTi 超電導線のはんだ付けを行っておいた。
4. 接着による電極の固定を行った。電極を平行に対向させることと、できるだけ電極間距離を短くすることが重要となる。まず、あらかじめ固定電極とキャップを Stycast2850GT で接着し、可動電極とダイアフラムを Stycast2850GT で、固定電極を固定したキャップを Stycast1266 で接着した。電極を平行に固定するため、図中のように固定治具内に実験セルを入れた。また、はんだ付けしたキャピラリーよりおよそ 7 MPa にペレットを加圧させ、両電極を接地させた状態 (挿入図左) を保ち Stycast の固化を行った。
5. 固化後、ペレットへの導入ガスを減圧すると、電極が離れ、導通が無くなる (挿入右)。また、両電極はセルから絶縁されていることを確認した。

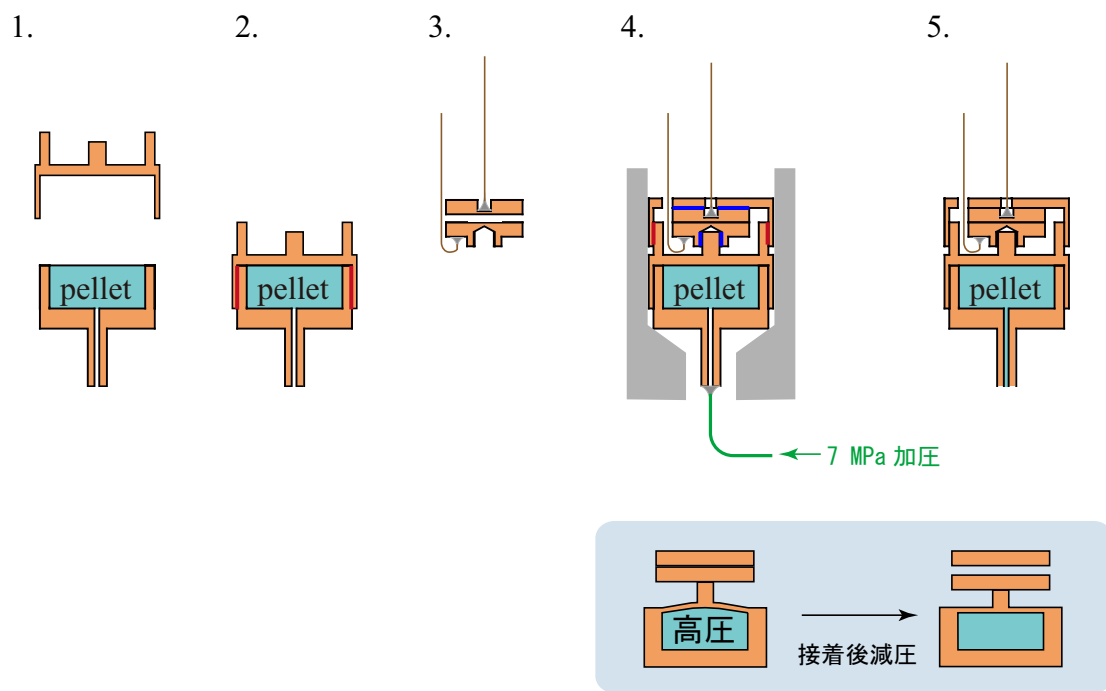


図 3.21: セルの作製過程. 図中の赤ラインは Stycast 1266, 青ラインは Stycast 2850GT を表す.

測定系について

温度計測・制御は、Cryogenic Control Systems社のCryocon62を用いた。温度ステージのRuO₂温度計とヒーターは、チャンネルAに配線され、モニターおよび温度制御する。バイアス電圧は330 μVに設定した。一方、セルの熱容量測定用のRuO₂もしくはCernox温度計はチャンネルBでモニターする。セルの発熱を防ぐため、セル温度の計測はバイアス電圧330 μVで行い、一部T_λの測定のみ3.3 mVに設定した。熱容量測定用のセルの箔ヒーターは、横河電機製プログラマブル直流電圧/電流源7651に配線され、熱パルスを加える。容量型歪み圧力計の両端子はANDEEN-HAGERLING社製のキャパシタンスブリッジAH2500Aに配線されている。励起電圧は0.015Vに設定した。

3.3.3 熱容量測定の概要

熱容量 $C(T)$ の物質に熱量 ΔQ を加えたとき、温度上昇が ΔT であったとき、

$$\Delta T \simeq \frac{\Delta Q}{C(T)} \quad (3.3.3)$$

である。本研究では、 $\Delta T/T$ がおよそ1%となるように熱量を加えた。

実際の熱容量測定は、測定例をあげて説明する。図3.22は温度 $T_{bef} = 0.9986$ Kにおいて、時間 $0 \leq t \leq 10$ sにおいて120 Ωのサンプルヒーターに定電流0.2271 mAを流した時のサンプル温度の時間経過である。一般に、電流を I 、時間 Δt 、ヒーターの抵抗を R とすると熱量は、 $\Delta Q = I^2 R \Delta t$ と与えられるので、加えた熱量は、6.2 mJとなる。次に、 ΔT を精度良く求めるために、以下のような指数関数のフィッティングを行った。

$$T(t) - T_{bef} = \Delta T \exp\{(t - 5)/\tau_{max}\} \quad (3.3.4)$$

ΔT と τ_{max} がパラメーターである。図3.22の赤線が $120 \leq t$ における指数関数フィットである。この場合、パラメーターは ΔT は0.009631 K、 τ_{max} は2161 sだった。本実験では、 ΔT はヒーターの通電時間の中央での値とした。

図3.24は実際に⁴Heが導入されていないセルに対して熱量測定を行った結果である。FSM16の熱容量セルの結果とほぼ等しく、想定範囲内で非常に小さいことがわかった。

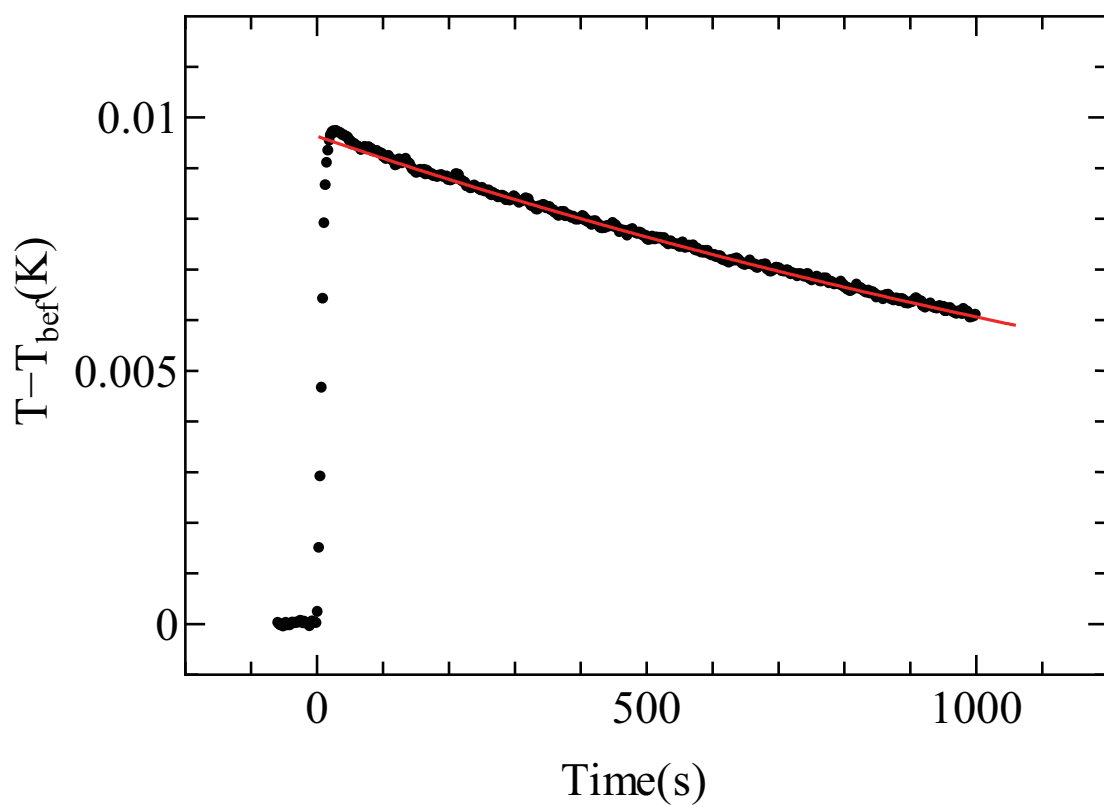


図 3.22: 熱容量測定の実測例とそのフィッティング.

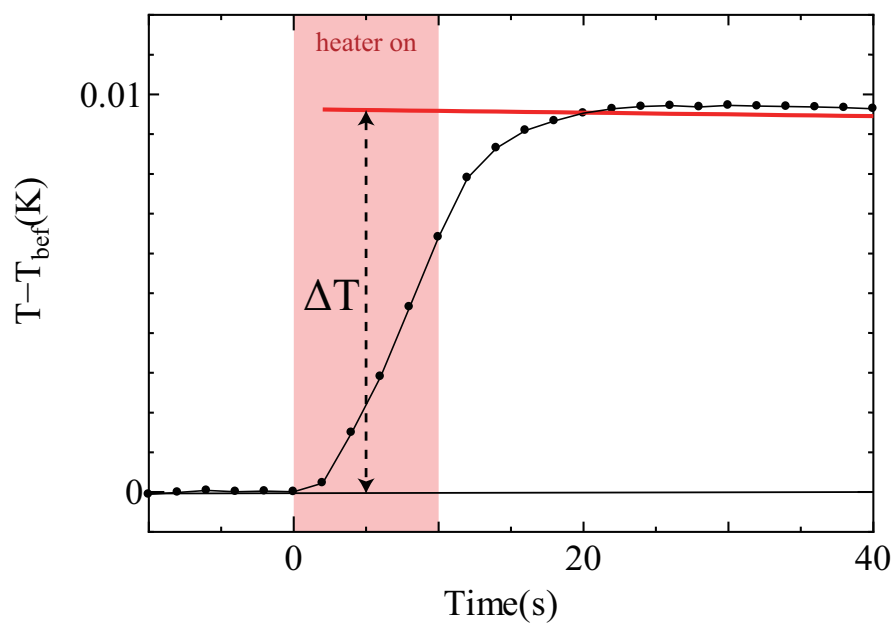


図 3.23: 熱容量の求め方.

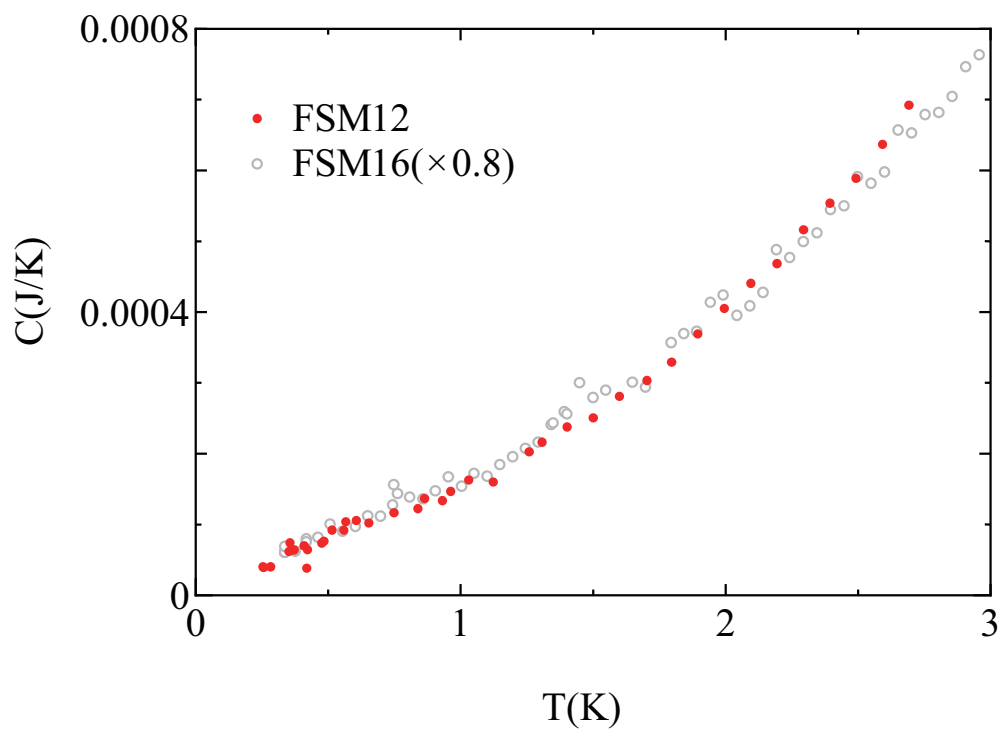


図 3.24: 空セルの熱容量. FSM16 の時の空セルデータを定数倍してプロットした.

3.4 極低温の生成

本節では、極低温の生成として希釈冷凍機の説明をする [36]. 本実験の最低温は 0.1 K で測定を行った. 極低温の生成には鈴木研究室自作の ^3He - ^4He 希釈冷凍機を用いた. この節では ^3He - ^4He 希釈冷凍機の原理について簡単に述べる.

液体 ^3He は $10^{-2}\sim 1$ K の温度域で数々の物質と比べて大きな比熱を持つため, エントロピーは大きい. 液体 ^3He を液体 ^4He で希釈混合することによって, ^3He のエントロピーを冷却に利用したのが ^3He - ^4He 希釈冷凍機である.

図 3.25 に, ^3He - ^4He 混合系の相図を示す. 相図は 0.87 K から始まる 2 本の共存線を持ち, 共存線で囲まれた条件にある状態では ^3He - ^4He 混合液体は, 共存線よりも低い温度の場合, ^3He が濃い相 (c 相) と薄い相 (d 相) に相分離する. ^3He は ^4He に比べて軽いため, 重力場内では c 相は d 相の上に浮かぶ. ^3He はフェルミ粒子であり, 低温でフェルミ縮退を起し, 理想フェルミ気体の式を使ってエントロピー S は

$$S = \int \frac{C}{T} dT = \frac{\pi^2}{2} R \frac{T}{T_F} \quad (3.4.1)$$

となる. フェルミ温度 T_F は

$$k_B T_F = \frac{\hbar}{2m^*} \left(\frac{3\pi^2}{v} \right)^{\frac{2}{3}} \quad (3.4.2)$$

で与えられる. ここで m^* は粒子の有効質量, v はモル体積である. d 相でのモル体積は ^4He で希釈されている分 c 相より大きく, T_F は式 (3.4.2) より低くなる. このため式 (3.4.1) より, 同じ温度において d 相は c 相よりエントロピーが大きい. c 相の ^3He を d 相に溶け込ませ, このエントロピー差に比例した熱量 $Q = T\Delta S$ を吸熱し冷却を行う.

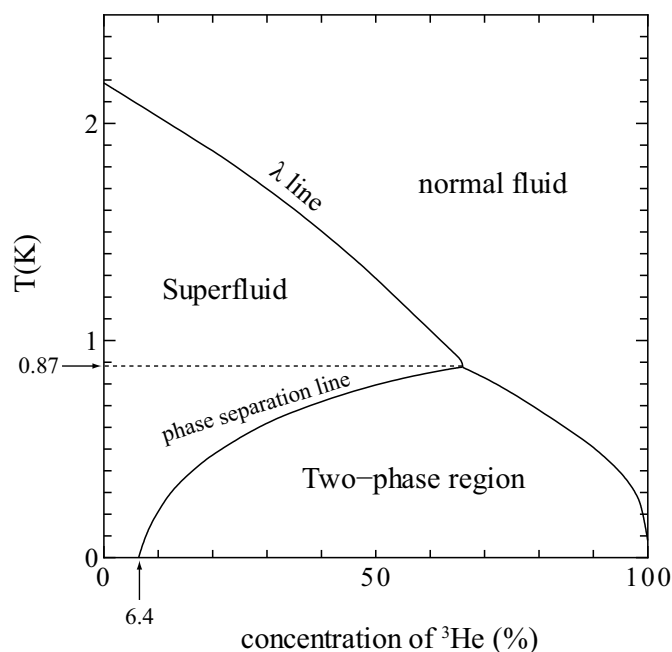


図 3.25: ${}^3\text{He}$ - ${}^4\text{He}$ 混合系の相図 [36][37].

図 3.26 に希釈冷凍機の模式図を示す. 最も温度が下がる相分離面は混合器 (mixing chamber) 内になければいけない. 冷凍機設計や希釈冷凍機全体のガス流量によって, 全量と混合比率を考慮した混合ガスを用意する.

希釈冷却された d 相中の ${}^3\text{He}$ は熱交換器 (heat exchanger) に入り, 循環する c 相の ${}^3\text{He}$ を冷却しながら分溜器 (still) に向かう. ${}^3\text{He}$ は蒸気圧が高いので選択的に分溜され, ${}^3\text{He}$ が豊富な混合ガスが室温部へ吸気される. ${}^3\text{He}$ が豊富なガスは室温部の真空ポンプで圧縮され, 冷凍機内へ戻る. 希釈冷凍ラインとは別系統の 1 Kpot 内の液体 ${}^4\text{He}$ (デュワー内 ${}^4\text{He}$ 寒剤から供給される) の減圧によって得られたおよそ 1.3 K のステージ中の凝縮器 (condenser) で ${}^3\text{He}$ リッチガスは再び液化される. この後, 熱交換器で十分に冷却され, 再び混合器に戻る. 運転は連続的に行われ, 極低温を長時間維持できる.

図中のインピーダンスは ${}^3\text{He}$ の流れを抑制し, 凝縮器及び分溜器中の熱交換器での圧力を各点の飽和蒸気圧より高く保つために設ける.

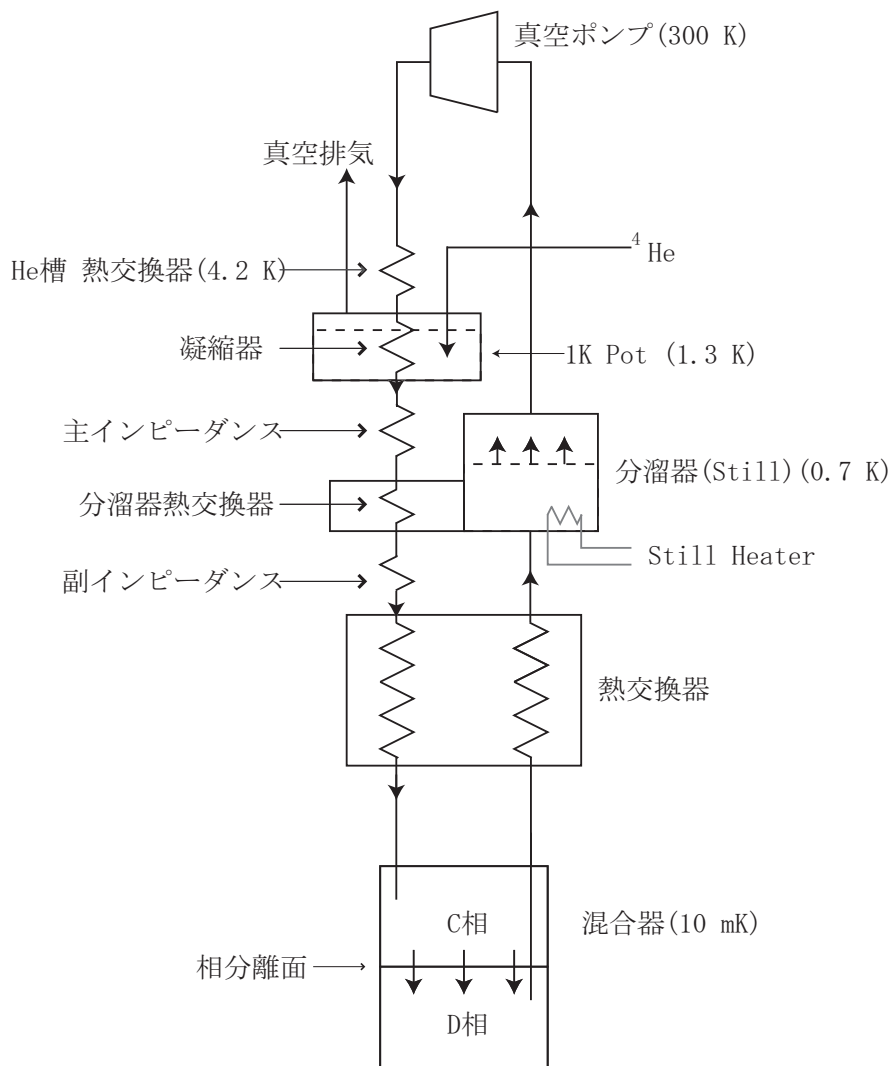


図 3.26: 希釈冷凍機の模式図 [36].

3.5 試料ガスの導入

本研究では、セルのサンプルセルへのガスの導入のために、図 3.27 のような GHS を用いた。継ぎ手と銅管で構成された標準体積空間 (体積 V_{ST}) は、圧力計の測定空間も含んでいる。 V_{ST} は事前に既知体積空間と校正がされている。圧力計は Setra 社製のモデル 204 を用いた。標準体積空間を介して試料ガスをサンプルセルへ導入することで、導入圧力や導入ガス量を制御できる。

以下に各実験における試料導入の方法を説明する。

- 2重連成ねじれ振り子実験における純粋な加圧液体 ^4He の圧力調整は、バルブ 7 の先に接続された高純度 ^4He ガスボンベの圧力調整器で行った。試料ガス導入時は、バルブ 7, 11 を開け、 LN_2 トラップを通して不純ガスを取り除き、バルブ 10, 2, 冷凍機直上のサンプルバルブを開けた。圧力計 (Setra 社製モデル 204, SN3210428) は、圧力レンジ 0-500PSI がのものを用了。
- 2重連成ねじれ振り子実験における薄膜液体 ^4He の導入量調整は、微量の試料ガスを扱うために、圧力計 (Setra 社製モデル 204, SN1019613) は圧力レンジが 0-25PSI のものに取り替えた。バルブ 7 の先に接続された高純度 ^4He ガスボンベより、バルブ 7, 11 を開け、 LN_2 トラップに試料ガスを導入する。一定量試料ガスがトラップにたまったら、バルブ 7, 11 を閉め、バルブ 10 の開閉とバルブ 5 開閉によるガスの抜き取りにより、導入モル数に対応した圧力に調整する。目的の圧力に達したら、バルブ 2 と冷凍機直上のサンプルバルブを開けて、試料ガスを導入した。
- 2重連成ねじれ振り子実験における希薄な ^3He - ^4He 加圧液体 ^4He の圧力調整のために、事前に目的濃度の混合ガスを予備タンクに必要量用意した。このように、使用できるガスが限られている場合は、ソープションポンプを用いて、ガスの加圧や抜き取りを行う。今回用いたソープションポンプは配管の先に活性炭が入った本体容器が銀ろう付けされている。本体容器が極低温時は本体容器のガスは吸着・液化し、配管内のガスを本体容器へ貯蔵できる。容器の温度が上昇すると、容器内の試料ガスは脱ガス・気化し配管内に戻り加圧される。今回は試料ガスがヘリウムであるため、ソープションポンプをベッセル内の液体 ^4He につけることで、試料ガスの圧力制御することとした。具体的には、バルブ 8, 11, 10, 1 を開け、十分清浄で極低温のソープションポンプ内に試料ガスを吸着、液化させ、バルブ 10 を閉める。バルブ 2, 冷凍機直上のサンプルバルブを開け、ソープションポンプをやや温度をあげることで、バルブ 1 の開閉により、目的の圧力に調整する。圧力計

(Setra 社製モデル 204, SN3210428) は、圧力レンジが 0-500PSI のものを用いた。

- 熱容量測定における ^4He 加圧液体 ^4He の圧力調整は、2重連成ねじれ振り子実験における純粋な加圧液体 ^4He の圧力調整と同様に行う。ただし、実験の一部で 60 気圧程度の高圧を用いるので、その際の圧力計 (Setra 社製モデル 204, SN1920823) は圧力レンジが 0-5000PSI のものを用いた。

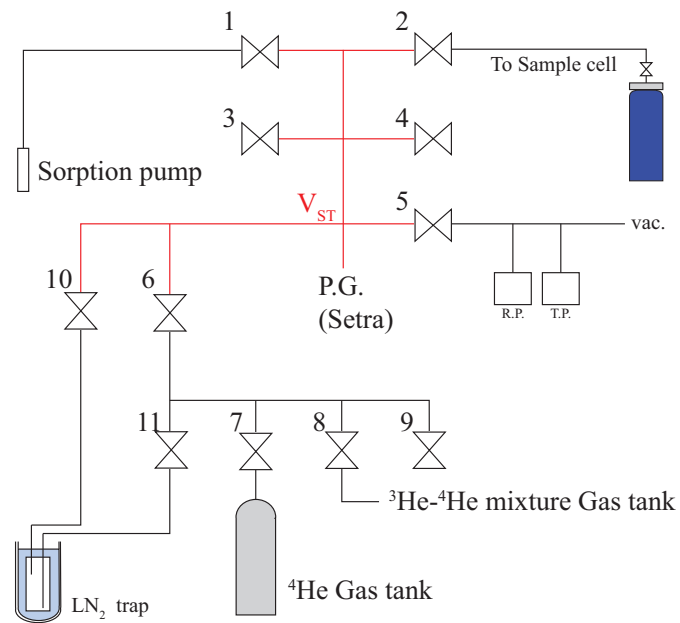


図 3.27: サンプル GHS. 標準体積空間 (体積 V_{ST}) が赤線の部分. ^4He ガスタンクには圧力調整器が取り付けられている.

第4章 純粋な⁴Heの超流動応答

本章では FSM16 中純粋な ⁴He の薄膜から加圧下液体の 2 重連成振子による超流動の測定結果を示す。

4.1 加圧下液体について

本節では、加圧下液体純粋な ⁴He の超流動の測定結果を示す。

4.1.1 各圧力の周波数変化と Q^{-1} の温度依存性

測定では ⁴He で満たした系と細孔を N₂ で埋めた系の両方で行い、その差を細孔中 ⁴He の周波数変化とした。まず、0.13 MPa における ⁴He で満たされた条件と N₂ で埋めた条件の比較を図 4.1 に示す。温度を下げると、 T_λ でバルク超流動転移のために周波数が立ち上がる。さらに温度を下げると $T/T_\lambda = 0.6$ 付近からゆるやかな細孔中の立ち上がりが見れ始める。また、 $T/T_\lambda = 0.4$ 以下の温度において急な立ち上がりや吸収ピークが見られた。

高周波 (f_h) モード低周波 (f_l) モードの比較を行うため、0.13 MPa における結果について、細孔中 ⁴He の応答としたものを図 4.2 のように比較する¹。2つのモードを比べると、周波数は 1.8 K 付近で緩やかに上昇し、最低温度付近で飽和する様子は一致する。一方、1 K 付近における低温側の急な立ち上がりや Q^{-1} のピークは、 f_h モードと比較して f_l モードが 40 mK ほど低温側に移動する。ここから、0.13 MPa において周波数の急な立ち上がりは、観測周波数に依存することがわかった。

低温側の急な立ち上がりや Q^{-1} のピークに着目し、各圧力で両モードの比較を図 4.3 のようにおこなった。1 K 以下でピークが観測される圧力に関しては、どの圧力でも急な立ち上がりや Q^{-1} のピークは、 f_h モードと比較して f_l モードが低温側に抑制される。

¹両モードの質量感度が異なるため、質量感度比の評価は付録 C で行った。

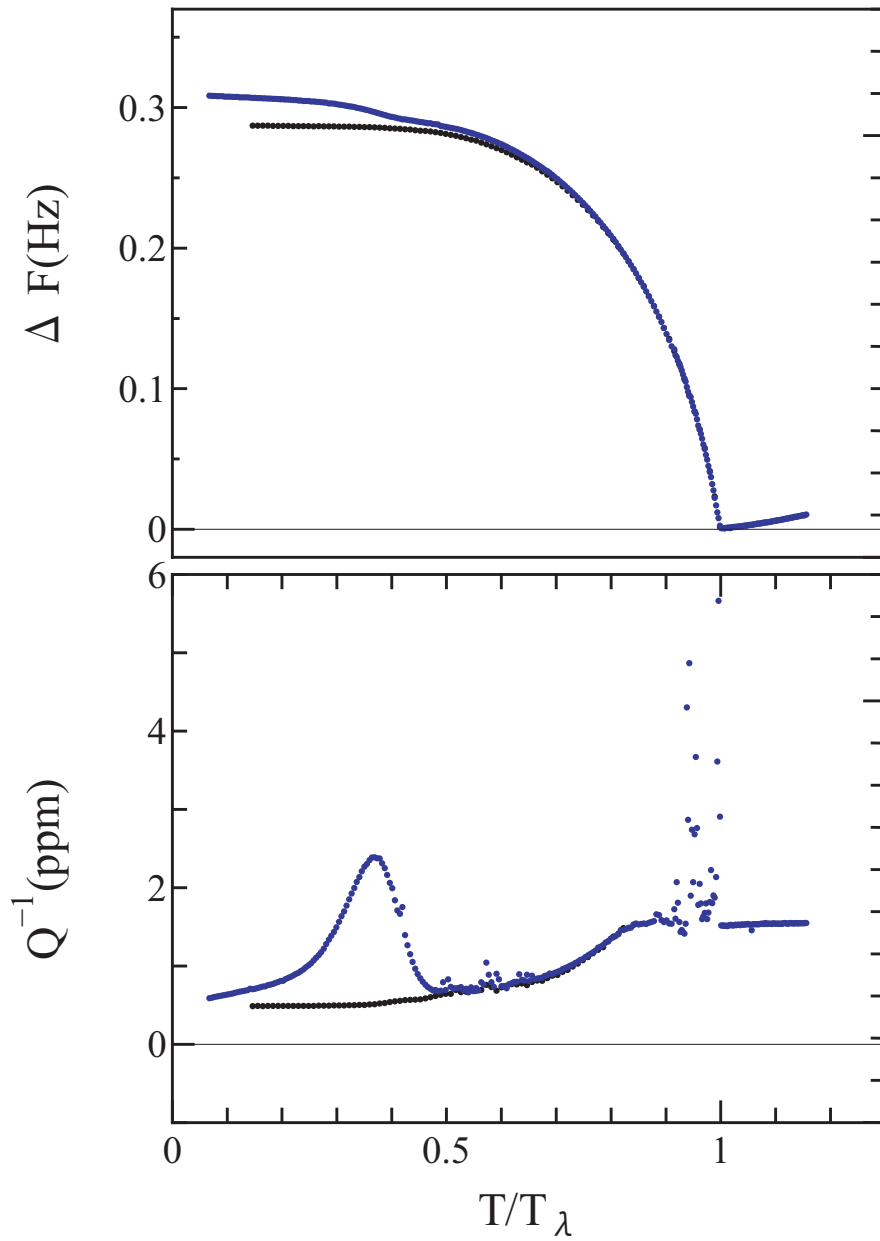


図 4.1: 0.13 MPa における ^4He で満たされた条件と N_2 で埋めた条件の周波数変化. 横軸の温度は各圧のバルク T_λ の温度で割っている. 青いマークが細孔内外の応答, 黒いマークは細孔を N_2 で埋めた測定の結果である.

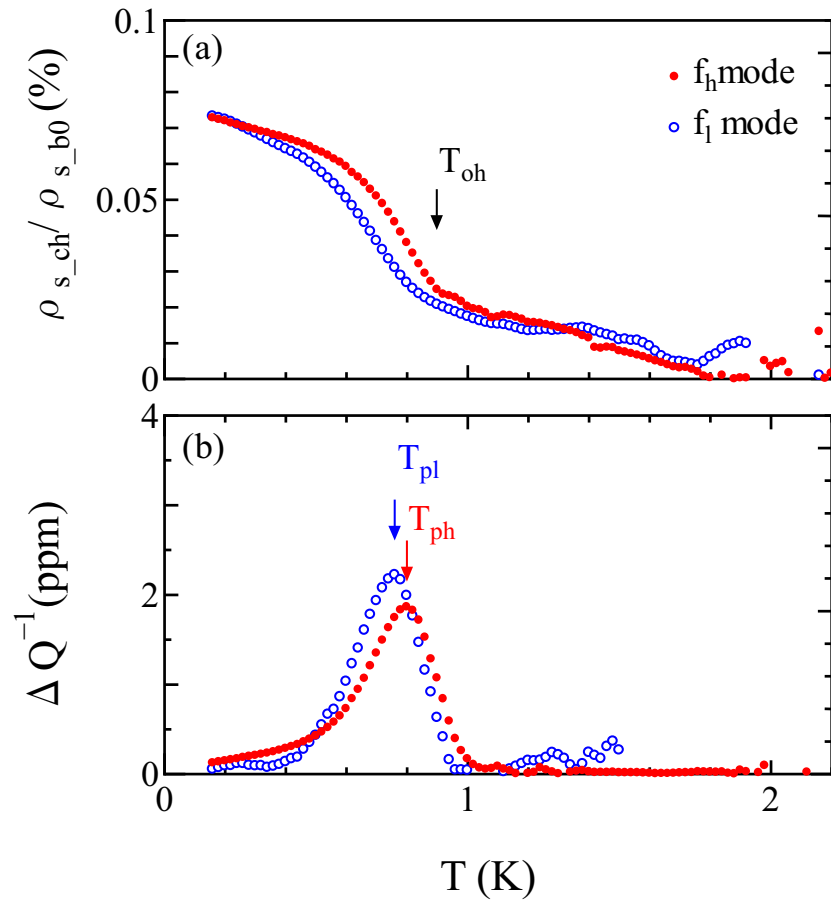


図 4.2: 0.13 MPa における両モードの細孔中 ^4He の周波数変化と Q^{-1} の温度依存性. 周波数は粉末外の寄与は差し引き, バルクの 0 K での寄与で規格化している. f_l モードの ΔQ^{-1} は 6.62 倍されている. 付録 C 参照.

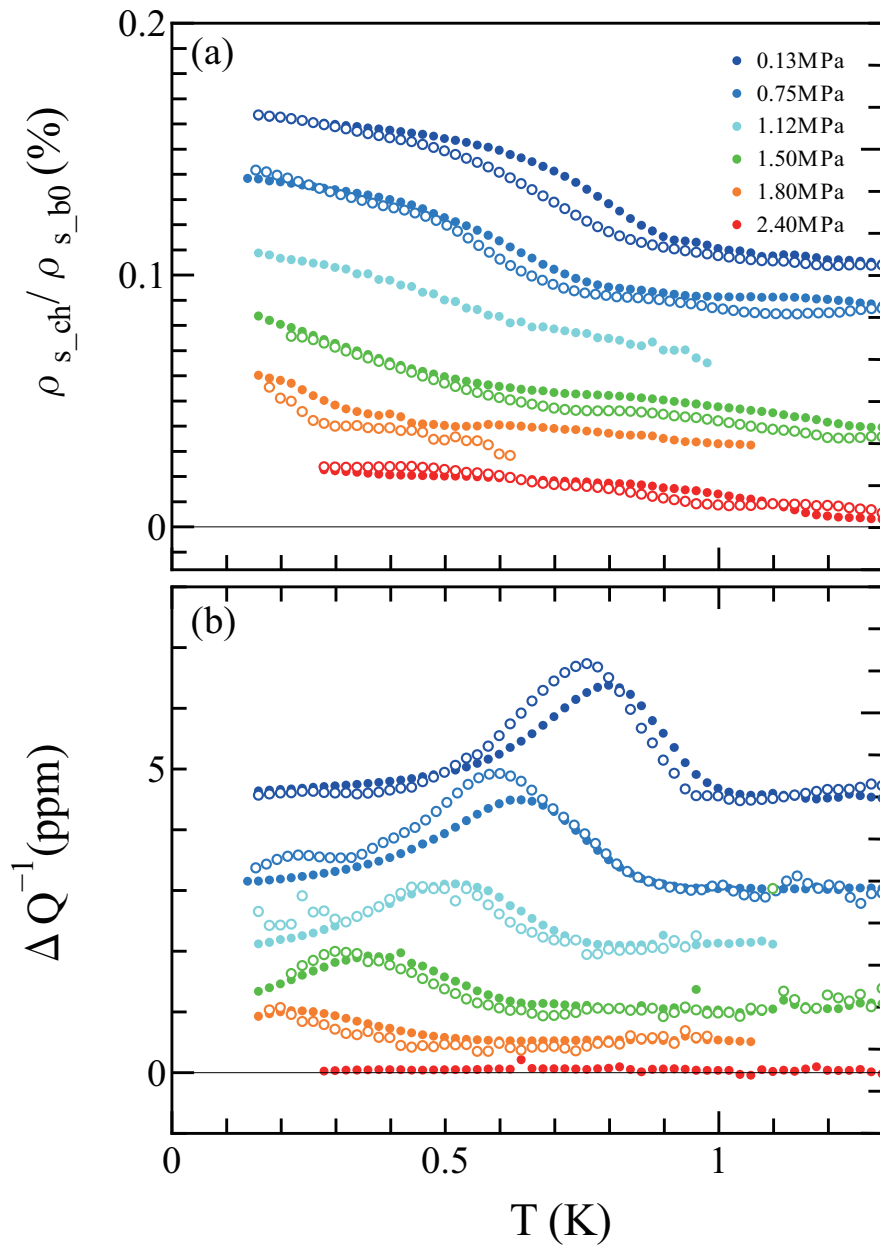


図 4.3: 低温側の各圧力における細孔内の (a) 超流動密度と (b) Q^{-1} の温度依存性. 両データとも見やすいように縦軸方向に移動した. ●は f_h モード, ○は f_l モードを表す. (a) 縦軸は絶対零度での超流動密度の大きさで規格化した.

4.1.2 温度圧力相図

0.13 ~ 1.83(1.50) MPa における $f_h(f_l)$ モードの吸収ピークの温度を $T_{ph}(T_{pl})$ とし、図 4.4 のような温度圧力相図にプロットした。また、 f_h モードにおける周波数の立ち上がりの温度 T_{oh} もプロットした。 T_{FO} は固化が始まる温度、 T_B は熱容量の肩の温度を示す [27]。超流動の急な成長は T_B 以下の温度で、BEC-like な低エントロピー状態に落ち込んでいる。

T_{oh} や T_{ph} 、 T_{pl} は加圧すると低温へ抑制される。また、 T_{ph} と T_{pl} の温度差は加圧により広がることもわかった。

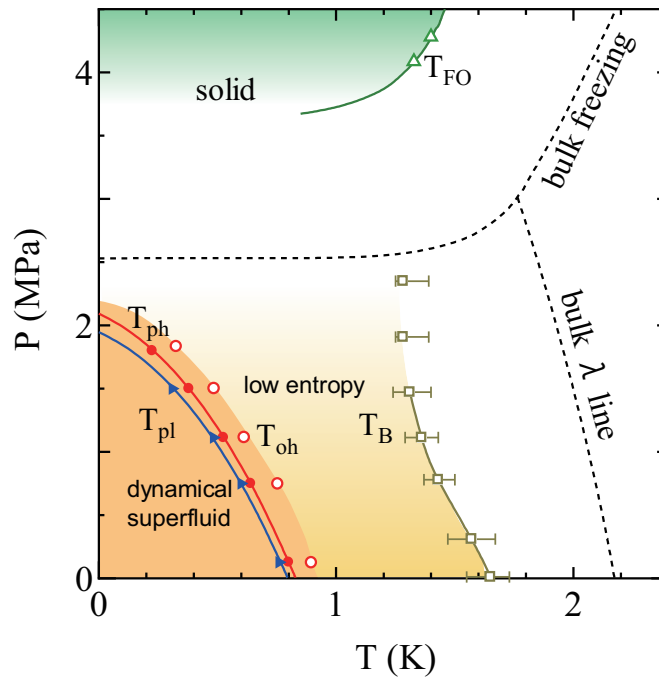


図 4.4: T_{ph} と T_{pl} は f_h モードと f_l モードの吸収ピークの温度を表している。 T_B は熱容量の肩の温度 [27]、 T_{FO} は固化が始まる温度である [28]。

4.1.3 理論計算との比較

周波数依存性に関しては、TL 液体に基づく理論的な予想が Eggel らによって提案されている (2.3.4 節参照)。この理論では、散逸ピーク温度 T_p は $f^{(1/(2K-3))}$ に比例するとしている。ここで、 f は測定周波数、 K は Luttinger パラメータである。また、 $K = \kappa \hbar \pi v \rho_0^2 = (\rho_0 \hbar \pi) / (mv)$ である。ここで、 κ は圧縮率、 v は音速、 ρ_0 は細孔内の 1 次元密度を示す。この関係式より、純粋な加圧下液体 ^4He の以前

の結果と同様に, $T_{ph}/T_{pl} = (2054 \text{ Hz}/505 \text{ Hz})^{1/(2K-3)}$ から K を見積もることができる.

本研究結果より見積もった K を図 4.5 に示す. 加圧により, 吸収ピークの温度比 T_{ph}/T_{pl} は増大することがわかったので, 加圧により K は減少する. これは, Eggel らの計算と定性的に一致することが分かった. また線密度 $\rho_0 = \rho\pi r_{\text{eff}}^2$, $r_{\text{eff}} = 0.7 \text{ nm}$, 熱容量測定から求めた細孔内のフォノン音速 v を用いて見積もった K も定性的に一致する.²

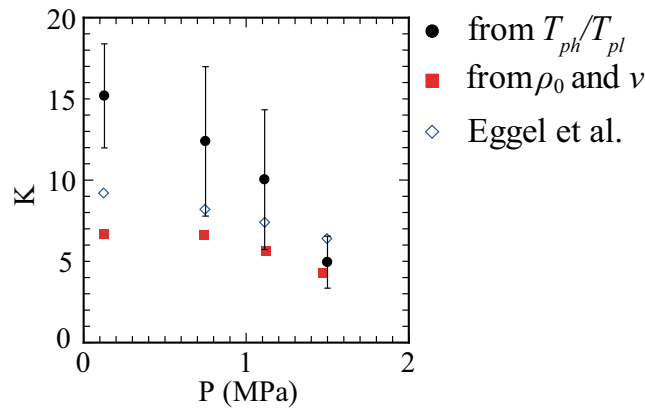


図 4.5: Luttinger パラメータと圧力の関係. ○: 実験から T_{ph}/T_{pl} を求め計算した. ■: ρ_0 と v より. ◇: Eggel らの計算結果 [23].

4.2 薄膜から加圧下液体に至るまで

本節では, 細孔中に ^4He を導入していき, 吸着薄膜から加圧下液体に至る過程での超流動応答の観測結果を周波数依存性も含めて示す.

4.2.1 ^4He 吸着圧力測定

少量の ^4He を FSM16 の粉末に導入していくと, 細孔表面上にシリンダー状の薄膜が形成されることが知られている [38]. 薄膜の厚さは ^4He の量が増えれば厚くなり, 細孔は最終的にある膜厚 n_1 でほとんど埋まると考えられる. n_1 以上では導入した ^4He が主に FSM 粉末の外側の表面に吸着し細孔外の膜厚が急増加する. n_1 を明らかにするために, 4.2 K で ^4He 吸着圧力 P を測定した. セットアップは図 3.27 と同様で, 冷凍機内のサンプルラインを介してねじれ振り子セル内の

² $v = \sqrt{\frac{1}{m\rho_0\kappa}}$ $K = \frac{\rho_0}{mv} \hbar v$ を用いた.

ペレットへ ^4He のモル数を測りながら導入した。吸着圧力 P は V_{ST} 内の圧力計を用いて測定した。図4.6に導入モル数を全表面積で割った平均面密度ごとの P を示す。全表面積には、BET理論により見積もった 90 m^2 を用いた。 P はおよそ 11 atoms/nm^2 から上昇し始め、この面密度以上では直線的に増加する。1層完了の面密度は 11 atoms/nm^2 と考えられる。そして、およそ 20 atoms/nm^2 で低面密度側からの外挿線よりやや離れ始める。インセットに示した dP/dn の立ち上がりをもとに n_1 とした。 ^4He を導入していくと、 n_1 以降では細孔外の薄膜が急に厚くなっていると考えられる。

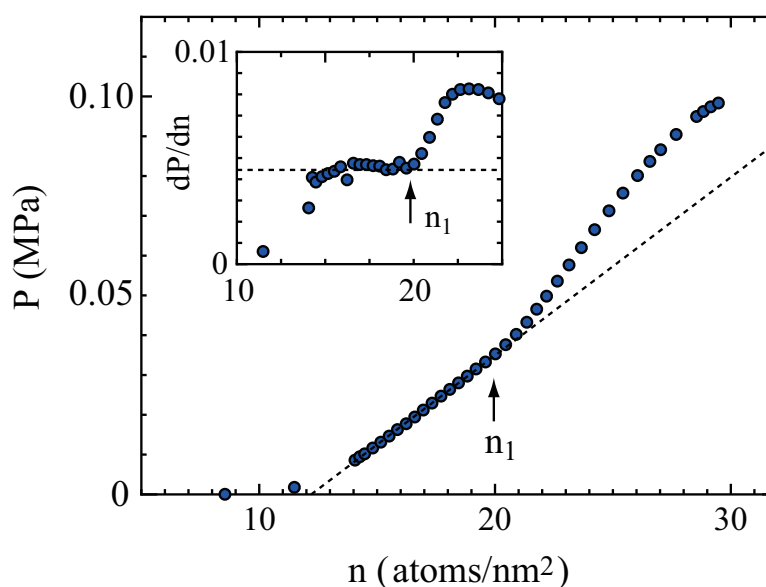


図 4.6: FSM16 における各面密度における ^4He 吸着圧力。

4.2.2 薄膜から飽和蒸気圧に至る間の超流動応答

図4.7は空セルから 16 atoms/nm^2 における周波数変化 ΔF の温度変化である。測定温度範囲内で、空セルと 16 atoms/nm^2 の ΔF は一致し、 ΔF は温度に比例して、傾きは $-1.04 \times 10^{-3}\text{ Hz/K}$ であった。空セルから 16 atoms/nm^2 までは、超流動成分が観測されないと考えられる。

図4.8は $16.4\text{--}20.4\text{ atoms/nm}^2$ における f_h モードの共振周波数変化 Δf と ΔQ^{-1} である。 Δf は T_{on} で鋭く増加し、 ΔQ^{-1} は T_{ph} で散逸ピークを観測した。面密度が増加すると、 T_{on} と ΔQ^{-1} は高温側へ移動し、散逸ピークの大きさ H_{ph} は増加した。また、 20.4 atoms/nm^2 の超流動応答は2段階の成長であることがわかった。

1段階目の成長は1.215 Kで観測され、小さな鋭い散逸ピークを伴っていた。この小さなピークを伴う応答は細孔外の薄膜のKT転移と考えられる。一方、さらに低温では、2段階目の超流動の成長が1 K付近で観測され、大きくブロードな散逸ピークを伴っていることがわかった。この成長は細孔内の ^4He の超流動応答に由来すると考えられる。20.4 atoms/nm²の結果と、それより小さな面密度の結果は、連続的に成長していることから、20.0 atoms/nm²以下で観測された大きい散逸ピークを伴う超流動応答の成長は細孔内外の ^4He の超流動応答が同じ温度域で観測されたと考えられる。

図4.9は20.4-26.8 atoms/nm²における f_h モードの共振周波数変化 Δf と ΔQ^{-1} で、0.13 MPaの純粋な液体 ^4He も示した。21.0 atoms/nm²以上では、 T_{on} は吸着 ^4He の脱着により測定されなかった。面密度が増加すると、0.9 K付近の周波数の急に成長する温度と T_{ph} はやや低温へ移動し、細孔内の超流動応答へ近づいていく。一方、散逸ピークと周波数の増加の大きさはより大きくなった。26.8 atoms/nm²の散逸ピークの高さはおよそ3 ppmで、0.13 MPaの液体 ^4He の大きさと近い。これは、細孔内の ^4He は変わらず、細孔外の薄膜が急に増加していると考えられる。

図4.10は平均膜厚18.5, 20.4 atoms/nm²における2つの周波数モードの $\Delta f/f$ と ΔQ^{-1} の温度変化である。20.4 atoms/nm²では、散逸ピークが0.95 Kで観測された。一方、 f_l モードの散逸ピーク温度 T_{pl} が f_h モードのピーク温度より30 mK低温に移動する事を観測した。この移動量は0.13 MPaの純粋な液体 ^4He の時よりやや小さい。一方、18.5 atoms/nm²での T_{ph} と T_{pl} の差は本研究の実験誤差5 mKより小さい事がわかった。

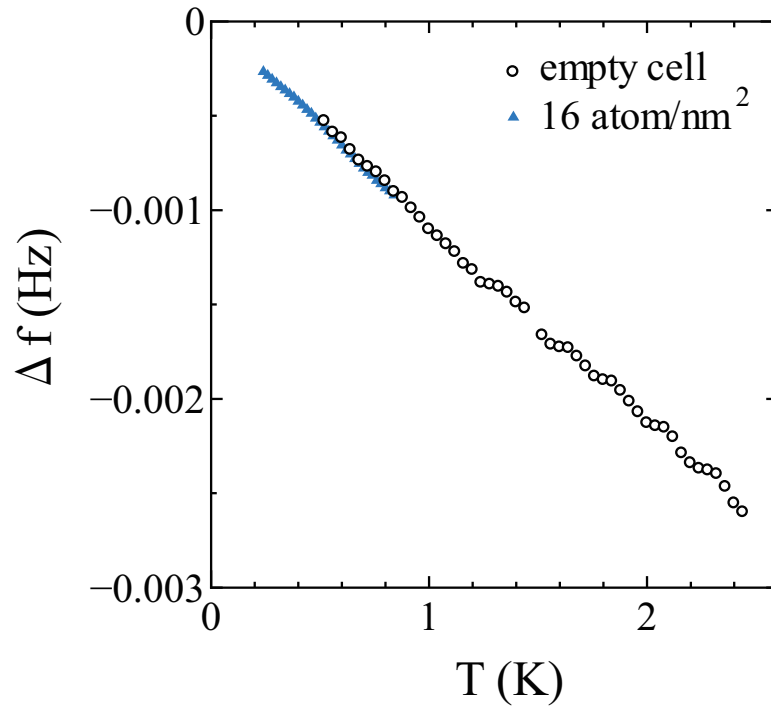


図 4.7: 空セルと 16 atoms/nm² における Δf の温度変化. 測定は f_h モードでおこなった. 縦軸は $T=0$ K で $\Delta F = 0$ と選んだ.

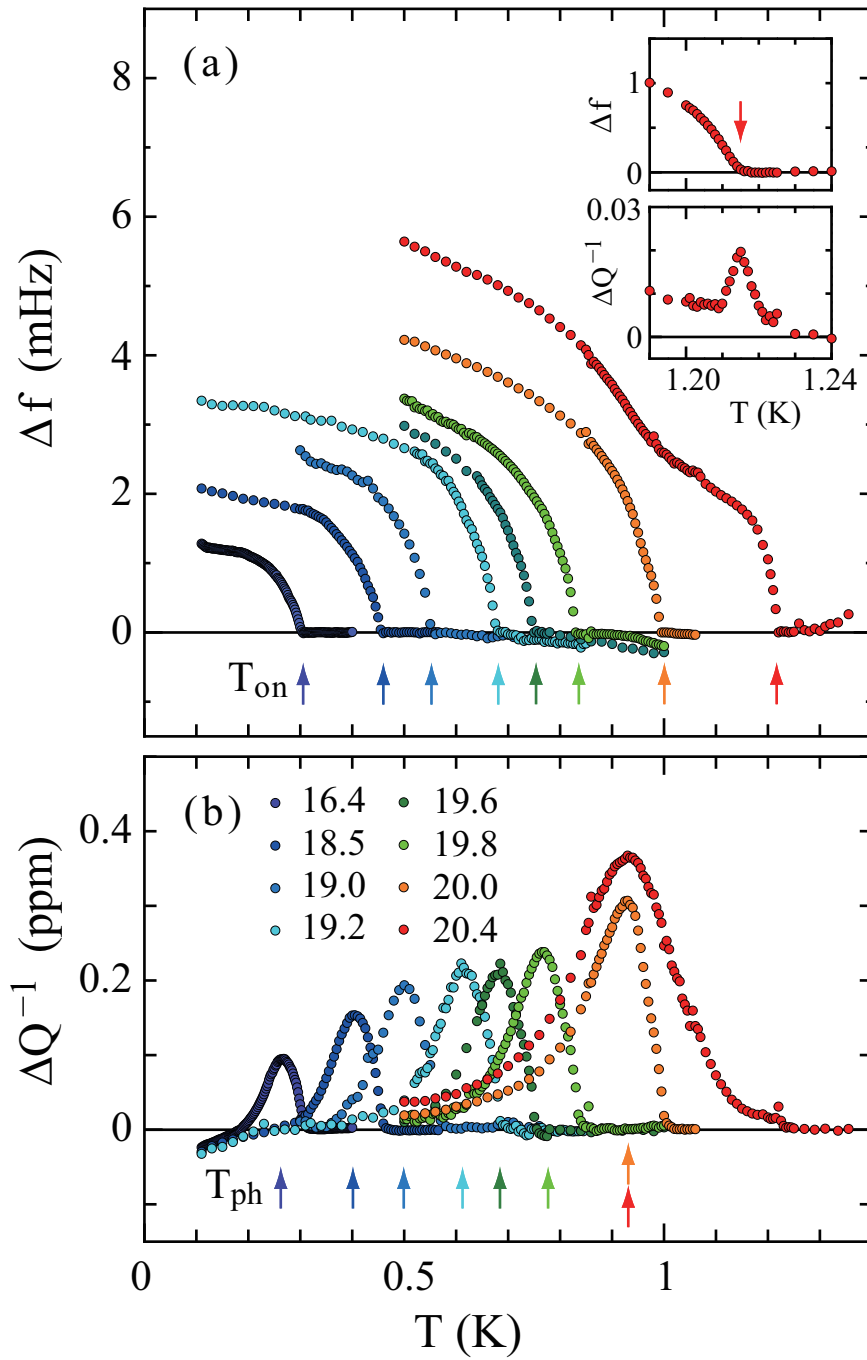


図 4.8: 平均膜厚 16.4-20.4 atoms/nm² における (a) Δf と (b) ΔQ^{-1} の温度変化測定は f_h モードで行った. 縦軸は Δf の急な立ち上がり点 T_{on} を基準とした. 挿入図は 20.4 atoms/nm² における高温の急な立ち上がりの詳細な測定結果.

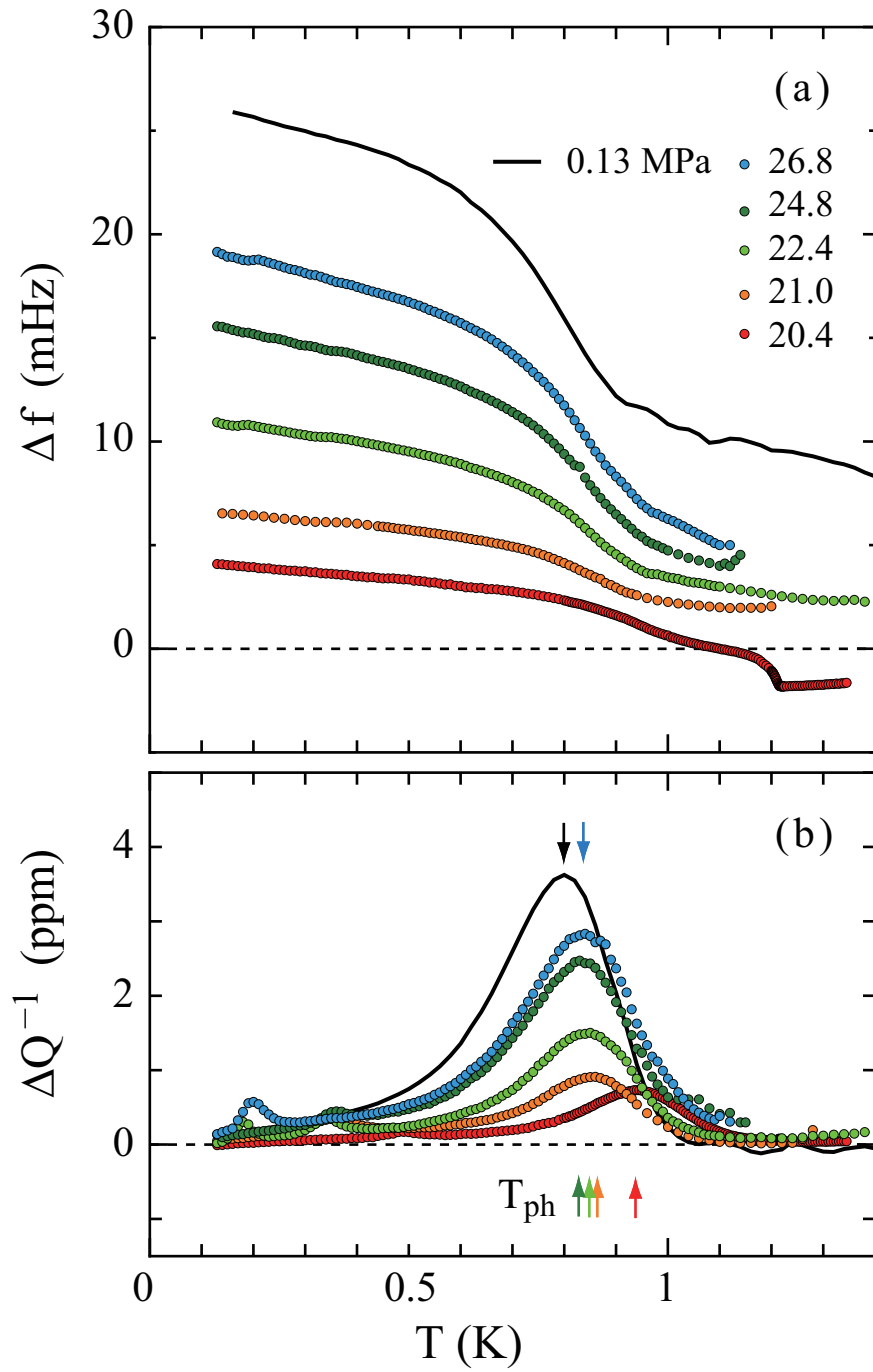


図 4.9: 平均膜厚 20.4-26.8 atoms/nm² における (a) Δf と (b) ΔQ^{-1} の温度変化. 測定は f_h モードで行った. 実線は 0.13 MPa のデータ.

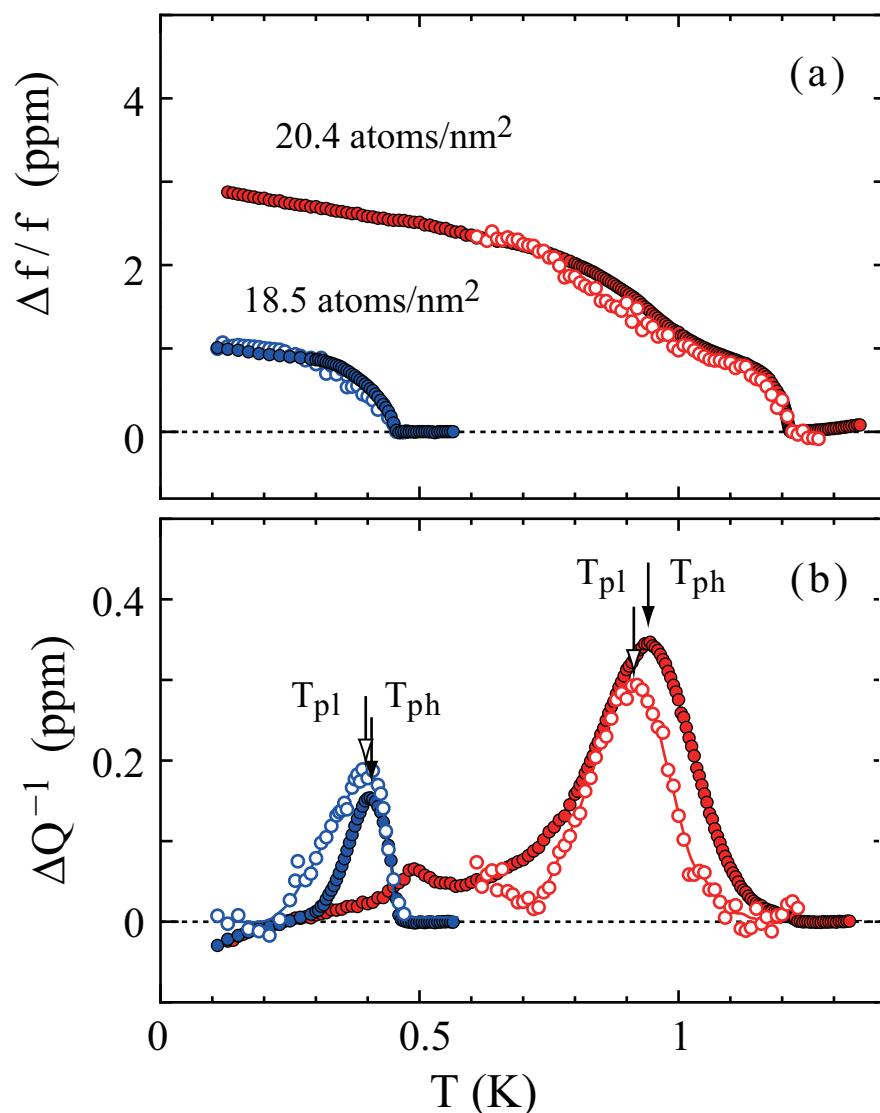


図 4.10: 平均膜厚 18.5, 20.4 atoms/nm² における (a) Δf と (b) ΔQ^{-1} の温度変化. ●は f_h モード, ○は f_l モードを表す.

4.2.3 薄膜から加圧下液体への連続性

この節では, 細孔内 ⁴He の超流動応答が薄膜から加圧下液体状態に至る過程における超流動応答をまとめる. 図 4.11 に, T_{ph} と H_{ph} の面密度 (圧力) 依存性をまとめた. (a) では, 超流動オンセット温度 T_{on} もプロットし, 平坦な表面で, 典型的な KT 転移が観測される Mylar シート上吸着 ⁴He 薄膜の結果も引用した. 不活性層の量の差を考慮して, Mylar シートの ⁴He 面密度は 2.9 atoms/nm² にシフト

している。本研究では、振る舞いごとに I: $n < n_1 = 20$ atoms/nm², II: $n_1 < n < 21$ atoms/nm², III: $n > 21$ atoms/nm² の3つの領域に分けた。

領域Iでは、 T_{ph} は T_{on} の変化に従う。面密度が n_1 に近づくと、 T_{ph} と T_{pl} の増加はより加速する。これは、FSM 粉末の表面に ⁴He が優先して吸着し、細孔内のオープンスペースへの吸着が少ないことを示している。また、 n_1 付近の ⁴He 導入による Mylar の T_{KT} の増加の比べて T_{on} の増加の方が大きい。

領域IIでは、 T_{ph} が減少し、 T_{on} は急に増加し続ける。これは、細孔内のオープンスペースが消え、FSM 粉末表面に観測される ⁴He が増えているからであると考えられる。また、加圧下液体状態では対照的に、 T_c がナノ細孔中の密度増加に伴い抑制される。

領域IIIでは、 T_{ph} はほとんど面密度依存性を持たない。一方、 H_{ph} は単調に増加し、図4.9に示したとおり、周波数はおおよそ比例して増加する。この振る舞いは H_{ph} は FSM 粉末表面上の薄膜の接続性に強く依存している。最終的に図4.11(d)に示すように、 H_{ph} はなめらかに 0.13 MPa の純粋な液体 ⁴He につながり、26.8 atoms/nm² 以上では、FSM 粉末間のオープンスペースも詰まっている状態である。

加圧下液体状態は領域IVと分類できると考えられる。図4.11(b)には T_{ph} と、熱容量の異常と超流動応答が現れる温度 T_B と、超流動応答が急に成長する温度 T_O も合わせてプロットした。ここで、 T_B はいつも $T_{ph}(T_O)$ より高い温度であり、 T_B と T_{ph} は加圧に伴い減少する。

ここで、細孔中 ⁴He が領域IIIではほとんど変化しないことから、領域I, II, IV の散逸ピークと周波数依存性を比較した。

図4.12は領域I, II, IVで観測された性質についてまとめたものである。図4.12(c)と(d)では、散逸ピークの幅で規格化された量 $\Delta T_{hw}/T_{ph}$ を示す。ここで ΔT_{hw} は低温側の半分の高さにおけるピークの幅である。領域IからIIの間では T_{ph} が大きく変わるのにもかかわらず、 $\Delta T_{hw}/T_{ph}$ はほとんど変わらなかった。しかし、これは、領域IIでは増加しはじめ、その傾向は領域IVに向けて拡大していった。

次に、周波数依存性を明らかにするため、 T_{ph}/T_{pl} の比を図4.12(e)と(f)にまとめた。これは、周波数依存性が領域IIからIVであり、加圧により増加が加速する。これより、周波数依存性が圧縮により強くなると考えられる。領域IIからIVの傾向から、領域Iの T_{ph}/T_{pl} が1に近いことが期待される。これは、低面密度領域での T_{ph} と T_{pl} の間の差が実験誤差内で観測されない原因であると考えられる。

周波数依存性に関しては、TL液体に基づく理論より、パラメータ K として図4.12(g)と(h)のようにまとめた。領域IIとIVでは、細孔中 ⁴He の圧縮に対して K は単調に減少する。これは、 κ と K が比例関係の理論と矛盾ない。

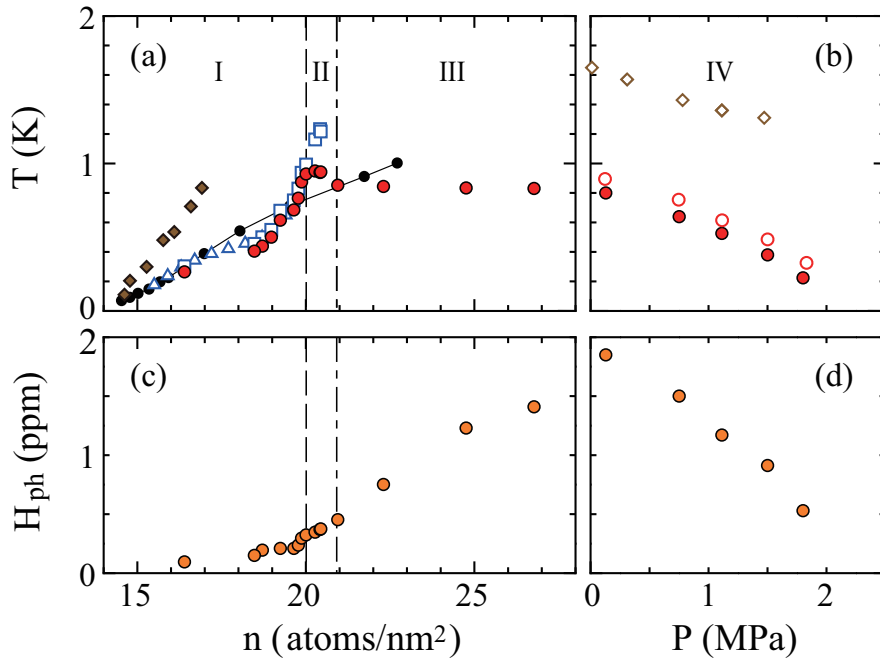


図 4.11: (a), (b) 散逸ピーク温度 T_{ph} と (c), (d) f_h モードの散逸ピークの大きさ H_{peak} の平均面密度と圧力依存性. これらのデータは薄膜から加圧下液体状態に至る過程を同一のサンプルと 2 重連成ねじれ振子で測定された結果である. (a) では超流動オンセット温度 T_{on} (\square) と引用 [3] からのオンセット温度 T_{on} (\triangle) を, Mylar 基盤上 ^4He の KT 転移温 (壊線) と共に示す. 加圧下液体状態では, 超流動応答が 2 段階に成長している. (b) では, 超流動応答と熱容量の異常が現れる温度 T_B (\diamond) を示し, 超流動が急に立ち上がる温度 T_{on} も示す.

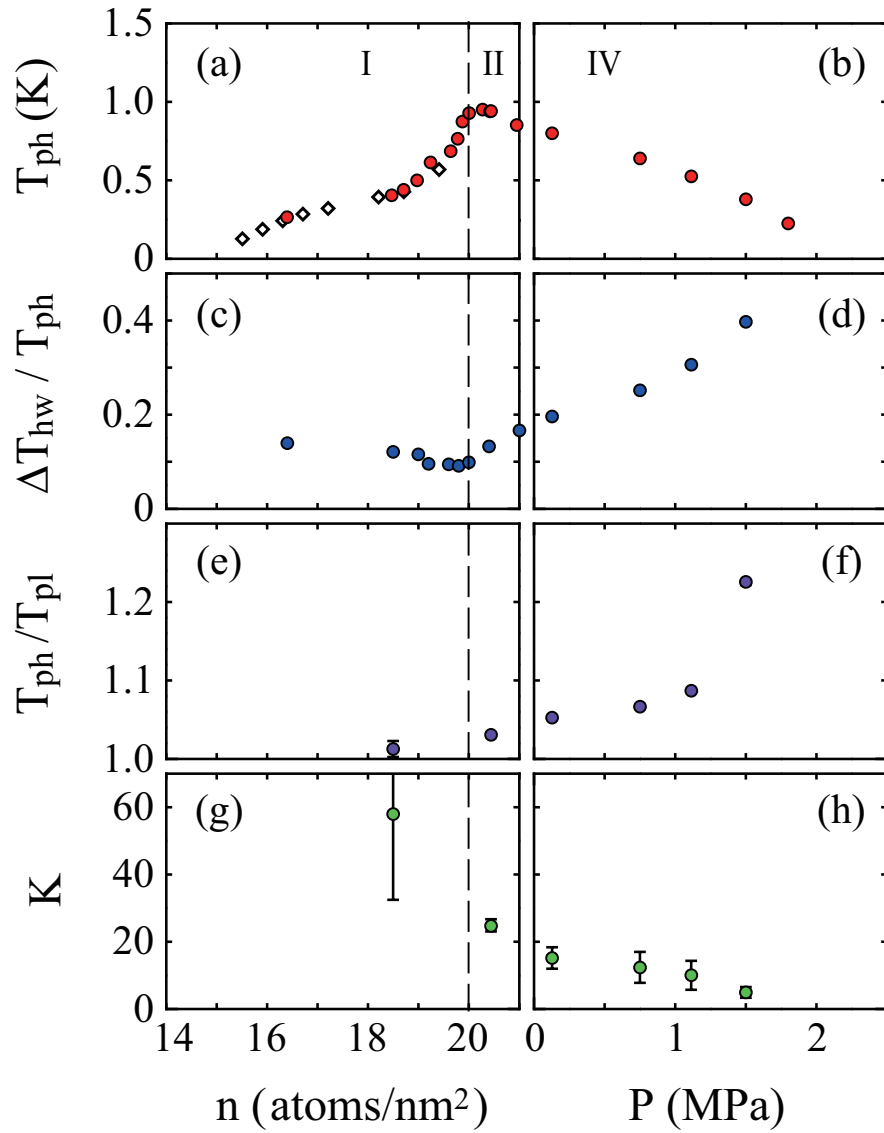


図 4.12: (a), (b) 散逸ピーク温度 T_{ph} と (c), (d) $\Delta T_{hw} / T_{ph}$ と (e), (f) T_{ph} と T_{pl} の比と Luttinger パラメーター K の面密度および圧力依存性. (a) では引用 [3] の単一ねじれ振り子 (2 kHz) による T_p も示す.

第5章 希薄な ${}^3\text{He}$ - ${}^4\text{He}$ の超流動応答

本章ではFSM16中加圧下液体希薄な ${}^3\text{He}$ - ${}^4\text{He}$ における2重連成ねじれ振子測定の結果を示す。この実験は、前章の加圧下液体の測定から一度もサンプルを室温にあげることなく、2012年7月より測定を継続した。2重連成ねじれ振子と試料は、純粋な ${}^4\text{He}$ の実験と同様のものを用いた。3.5に示した通り、 ${}^3\text{He}$ の濃度が2.0, 4.0 at%の ${}^3\text{He}$ - ${}^4\text{He}$ 混合液体を導入した。

5.1 周波数変化と Q^{-1} の ${}^3\text{He}$ 濃度依存性

f_h モードでは、0.13-1.66 MPaの様々な圧力において0.0, 2.0, 4.0%の測定を行った。図5.1に0.13 MPaにおける3つの濃度の共振周波数と ΔQ^{-1} の温度変化を示す。純粋な ${}^4\text{He}$ 系で示した通り、細孔中の超流動応答はおよそ1.6 Kから窒素で満たされた時の応答と別れ始め、0.90 K($T_O(0)$)で急に増加する。そして、周波数変化は0.021 Hzに近づいていく。 $T_O(0)$ 以下の急な増加は細孔中液体 ${}^4\text{He}$ の超流動応答と考えられる。加えて、この増加は0.80 K($T_{ph}(0)$)で最大値になるブロードな吸収ピークを伴っている。

少量の ${}^3\text{He}$ を加えると、全体の振る舞いは大きく変わらなかったが、超流動応答は低温側へシフトした。 $T_O(x)$ と $T_{ph}(x)$ の両方は、2.0 at%ではおよそ35 mK、4.0 at%ではおよそ70 mKそれぞれ減少した。これらのシフトは、 ${}^3\text{He}$ 濃度に比例していて、少なくともこの温度域では細孔中の ${}^3\text{He}$ 濃度も細孔外のバルクの濃度に比例していることを示している。 ${}^3\text{He}$ - ${}^4\text{He}$ 混合液において、およそ0.3 Kで周波数変化と ΔQ^{-1} の異常を観測した。これは、粉末間オープンスペースの応答と思われる。詳しくは付録Bで示す。

純粋な系では超流動応答と吸収ピークは圧力を高くすると低温へ移動し、2.0 MPa以上では絶対零度付近まで移動した。また、 ${}^3\text{He}$ - ${}^4\text{He}$ 混合液における応答の加圧に対する振る舞いは純粋な系と同様であった。図5.2の温度圧力相図に $T_{ph}(0)$ と $T_{ph}(0)$ をプロットした。1.0 MPa以上ではオープンスペースの異常と細孔中の超流動応答に由来する吸収ピークをわけることが難しく、 $T_{ph}(x)$ はわからなかった。0.75 MPa以下の ${}^3\text{He}$ - ${}^4\text{He}$ 混合液では $T_{ph}(x)$ は $T_{ph}(0)$ と平行に移動することがわかった。 $T_{ph}(x)$ の ${}^3\text{He}$ 濃度依存性を挿入図に示した。縦軸は純粋な ${}^4\text{He}$ の $T_{ph}(0)$

で規格化している。圧力が0.13 から0.75 MPaになると、 $T_{ph}(0)$ は0.64 Kに抑制された。一方、 $T_{ph}(x)/T_{ph}(0)$ は実験のエラー範囲内で直線にのっている。

ここで、他の系と比較する。バルク ^4He では、超流動開始温度は2.17 Kで、4.0 at%では60 mK抑制される [39]。一方、有効孔径6.24 nmの3次元ネットワーク構造をもつVycorガラスでは超流動開始温度は6.4%では110 mK抑制される [40]。また、1-20 nm [41]の空間をもつ空孔率87%のAerogelでは、6%の ^3He 濃度では抑制の大きさは160 mKであった [42]。これらの値と比較すると、 $T_{ph}(x)$ の抑制は著しく大きくはないことがわかる。それゆえ、FSM16の細孔中 ^3He は3次元系と異なる機構ではあるが、量子コヒーレンスを壊してはいないと考えられる。

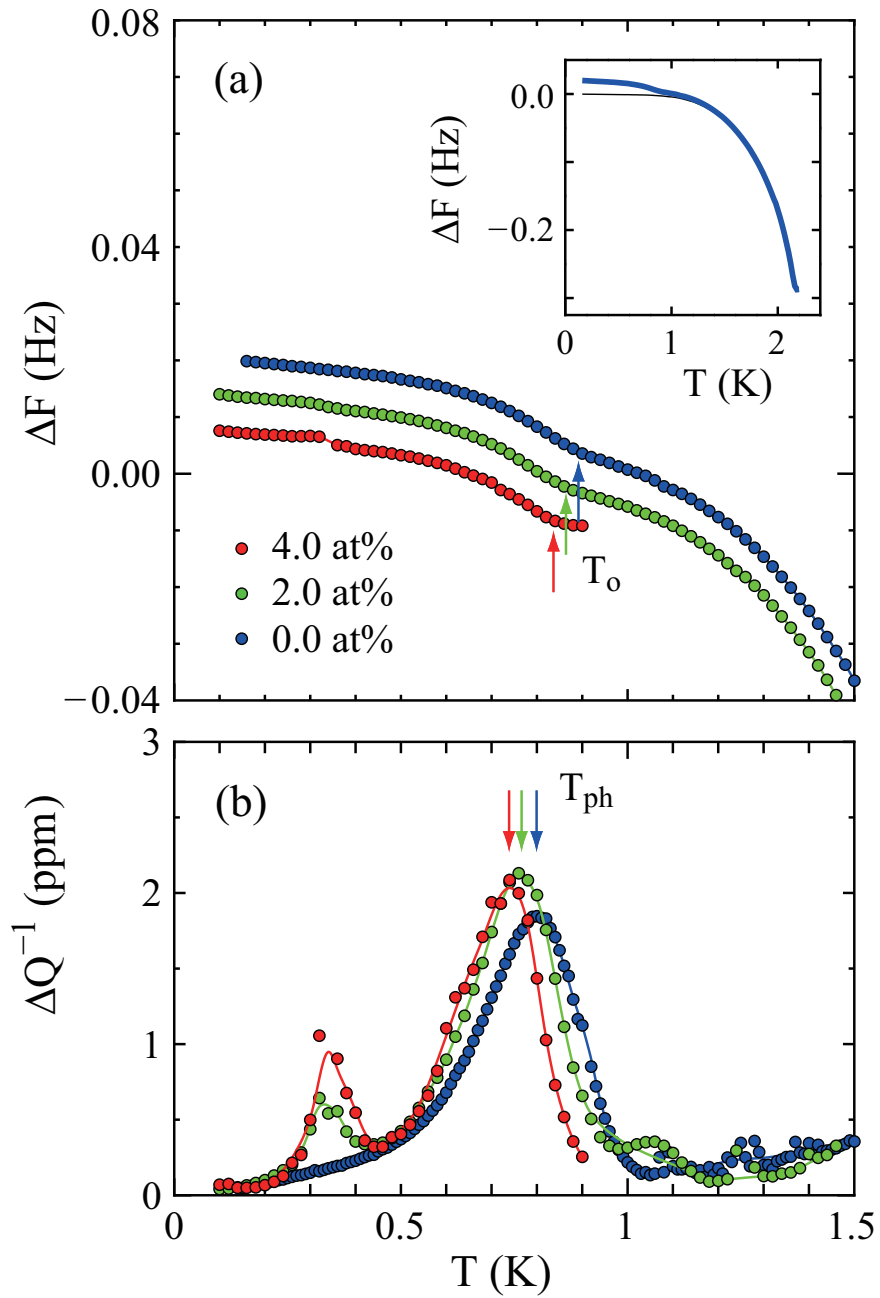


図 5.1: 0.13 MPa の 0.0, 2.0, 4.0 at% における f_h モードの (a) 共振周波数変化と (b) ΔQ^{-1} の温度変化. 縦軸の基準は細孔に窒素を満たした時の絶対零度の共振周波数. 2.0, 4.0 at% のデータはシフトしている. 挿入図は 0.0 at% における広い温度域のデータと窒素を満たした時のデータ (黒実線). (b) f_h モードの ΔQ^{-1} の変化.

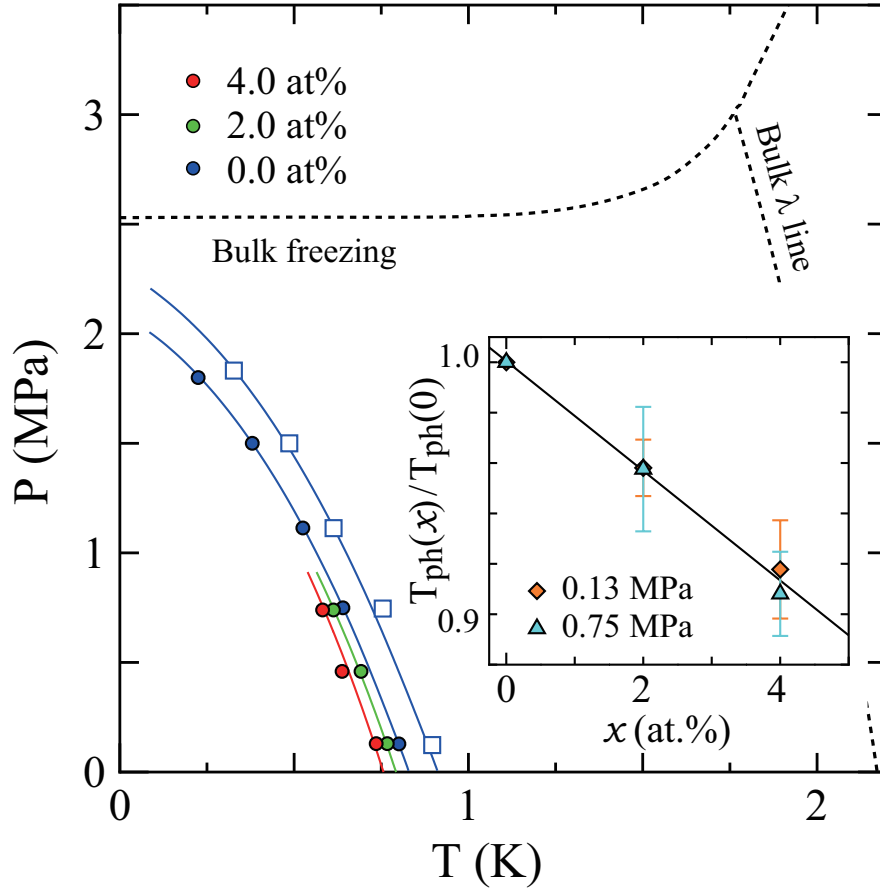


図 5.2: f_h モードの温度圧力相図. ●は T_{ph} , □は純粋な ^4He の T_O . インセットは $T_{ph}(x)/T_{ph}(0)$ の ^3He 濃度依存性. ◇は 0.13 MPa, △は 0.75 MPa を示す.

5.2 周波数変化と Q^{-1} の周波数依存性

観測周波数依存性を調べるために, 0.13 と 0.75 MPa について f_l モードの観測を行った. 図 5.3 に 0.13 MPa 加圧時の 0.0, 2.0, 4.0 at% の両モードの ΔQ^{-1} の変化を示す. 純粋な ^4He の f_l モードの吸収ピーク温度 $T_{pl}(0)$ は $T_{ph}(0)$ と比べて 40 mK 程度低温で観測された. ^3He - ^4He 混合液でも, $T_{pl}(x)$ と $T_{ph}(x)$ の差は同様な値であり, 差は ^3He の濃度に強く依存するわけではないことがわかった.

Eggel らの予想では, TL 液体に基づいた細孔中の超流動応答は観測周波数に依存するとしている (第 4 章参照). 彼らは, 系を特徴づける Luttinger パラメータ K と周波数, 吸収ピーク温度 T_p には $T_p = A f^{1/(2K-3)}$ の関係成り立つとした. 図 5.4 に $T_{pl}(x)$ と $T_{ph}(x)$ の比より得られた K の ^3He 濃度依存性を示す. ^3He を加え

ても K は大きく変わらないことがわかった。

TL 液体では, K は物理量を用いて $K = \hbar\pi\rho_0/mv$ と書ける. ρ_0 は数線密度, m は粒子の質量, そして v は音速を示す. バルクの ^3He - ^4He 混合液では, 音速は ^3He を加えるとやや減少する [43][44]. 4.0 at% での変化量は純粋な ^4He の 1% 未満である. また, ρ_0 と m は大きくは変化しないと思われ, 今回 ^3He - ^4He 混合液で K が大きく変化しなかったことと合理性がある.

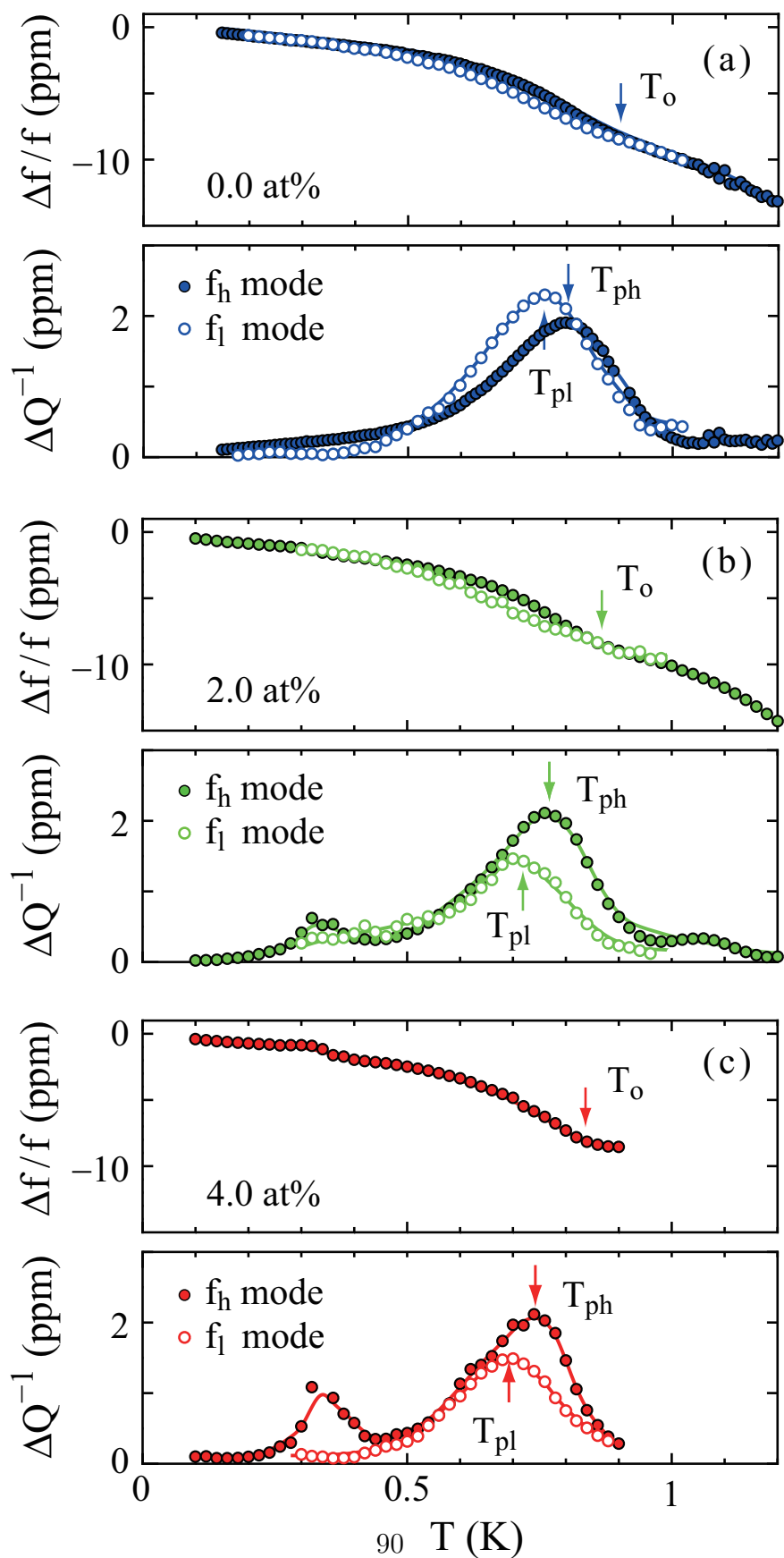


図 5.3: 0.13 MPa 加圧時の f_h , f_l モードにおける ΔQ^{-1} の温度依存性. ●は f_h モード, ○は f_l モードを示す. 各データは縦軸方向にシフトしている.

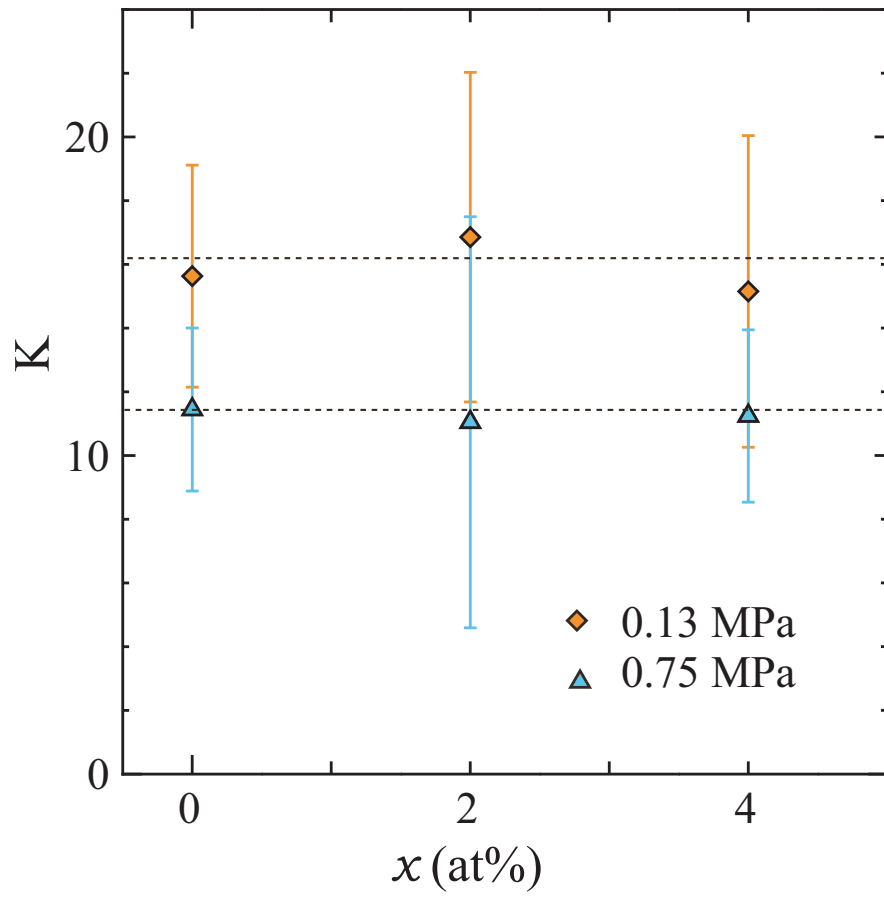


図 5.4: K の ^3He 濃度依存性.

第6章 細孔中⁴Heの熱容量

本章では、細孔径が2 nmのFSM12細孔中⁴Heの熱容量測定の結果を示す。FSM12は先行してねじれ振り子測定が行われ、WadaらによってFSM12中に吸着した⁴Heの熱容量測定を行われている[46]。

6.1 FSM12ペレット内⁴Heの全熱容量

ペレットはFSM粉末や銀粉を焼結しているため、粉末内細孔空間と細孔外の粉末間空間が存在する。液体⁴Heを導入して熱容量を測定すると、細孔内外の応答とセルの銅容器粉末や結晶部を含むセルの応答が観測される。ペレット内に⁴Heを様々な圧力の液体⁴Heを導入したときの熱容量を図6.1に示す。バルクの固化圧以下の0.1, 1.1, 2.4 MPaの圧力で測定を行った。図3.24の空セルの測定結果から、2 Kではおよそ0.4 mJ/Kで、0.5 Kではおよそ0.1 mJ/K以下であることがわかった。本実験で加圧下液体でセルが満たされているとき、最低温度はおよそ0.4 Kであり、熱容量は0.5 mJ/K程度であることから、観測される熱容量のほとんどがセル中の⁴Heの応答であると考えられる。

熱容量は、バルクの T_λ 付近で鋭いピークを持ち、細孔外のバルクの寄与であると考えられる。また、圧力を加えると、ピークは低温へ移動することがわかった。バルクのモル比熱 C_{bulk} における T_λ での発散は、次の式で書ける。

$$C_{bulk} = \begin{cases} -A_0 \log_{10}(|T - T_\lambda|/K) + B_0 & (T < T_\lambda) \\ -A'_0 \log_{10}(|T - T_\lambda|/K) + B'_0 & (T > T_\lambda) \end{cases} \quad (6.1.1)$$

図6.1の0.10 MPaに対し横軸を $\log(|T - T_\lambda|/K)$ にとったものが図6.2であり、 $\log|T - T_\lambda| < -2$ の範囲でフィッティングを行うことにより係数 A_0 ($T < T_\lambda$)と A'_0 ($T > T_\lambda$)を求め、バルクの係数と比較してバルクのモル数を見積もった。バルクは4.0 mmolあるとし、バルクの寄与を除いたものが図6.3となる。1.1, 2.4 MPaについては、0.1 MPaに比べて密度が増大していることを考慮して差し引いた。図6.3より、バルクの T_λ よりやや低温に大きなピークが残っている。これは、粉末間の一部にサイズ効果により転移点がシフトする液体があるからだと考えられ

る。図 2.4 の超流動転移温度の孔径依存性 [7] から、数 μm の空間であると見積もることができる。

0.1 MPa において 1.95 K でも熱容量の異常が観測され、この異常温度は加圧すると低温へ移動し、2.4 MPa では 1.60 K だった。この異常の対応する空間の細孔径は、図 2.4 からおよそ 4 nm と見積もることができる。さらに、FSM16(細孔径 3 nm) の熱容量の異常が 0.1 MPa において 1.65 K であったので、FSM16 よりも大きい空間での異常である。そのため、1.96 K の異常も細孔外の応答であると結論づけた。

バルクの固加圧以上である 3.3, 2.8 MPa の圧力下における熱容量を調べた。図 6.4 のように、熱容量とセルの静電容量型圧力計の温度依存性を示す。2.8 MPa の昇温過程では、高温で大きなピークがあり、温度上昇に対し、1.8 K 付近から急に熱容量が増大した。また、1.65 K 付近に小さなピークが観測された。3.3 MPa では、昇温過程も降温過程も高温側で大きなピークがあり、さらに低温で昇温過程のみ別のピークが観測された。一方、圧力変化では、両圧力とも、1.2 K 以上に昇温過程と降温過程の曲線にヒステリシスが観測された。これは、細孔外の ^4He の固化および融解と考えられる。

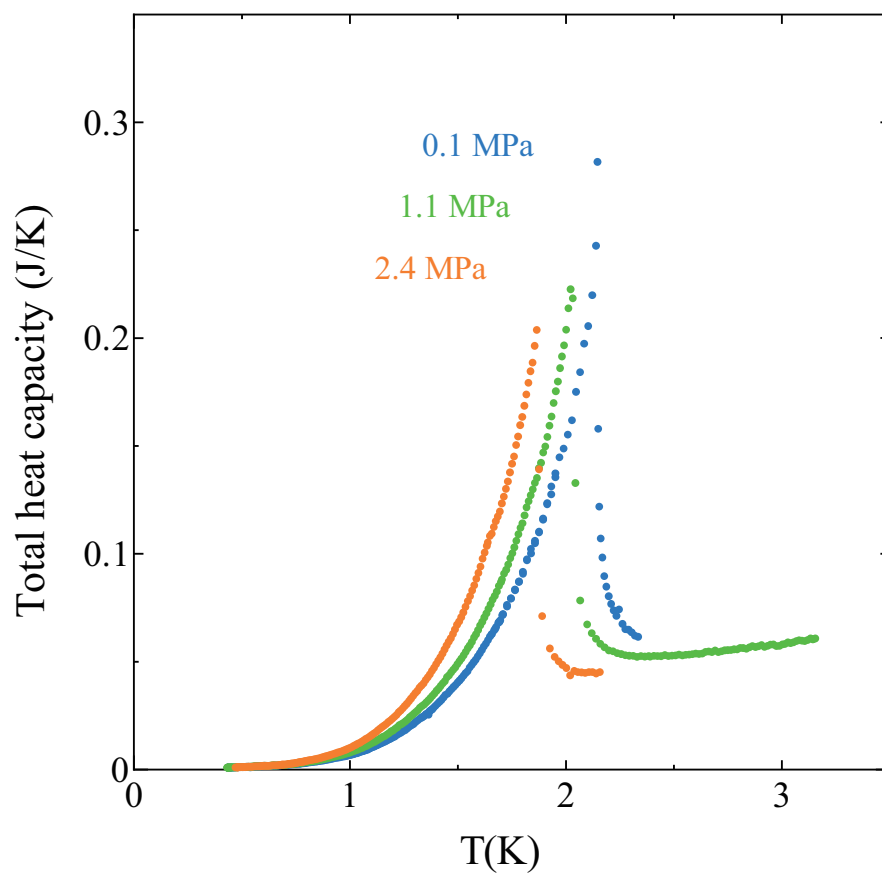


図 6.1: バルクの固化圧以下の全熱容量.

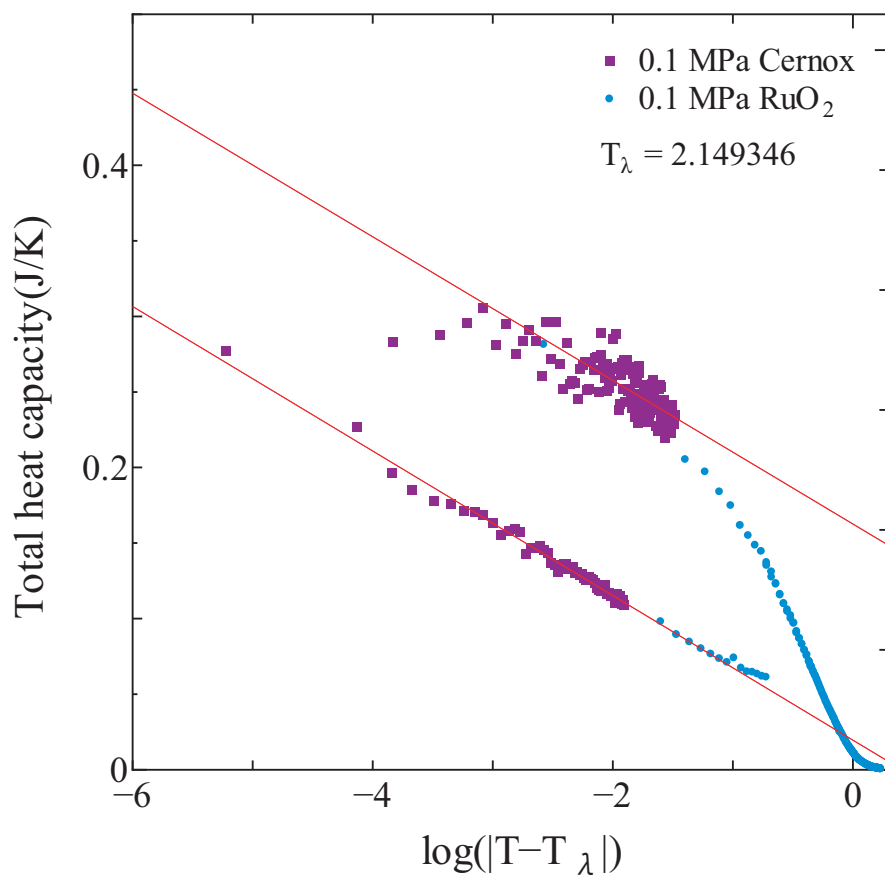


図 6.2: 0.1 MPa における全熱容量. 横軸を $\log|T - T_\lambda|$ にとった. $\log|T - T_\lambda| < -2$ は Cernox 温度計の結果をプロットした.

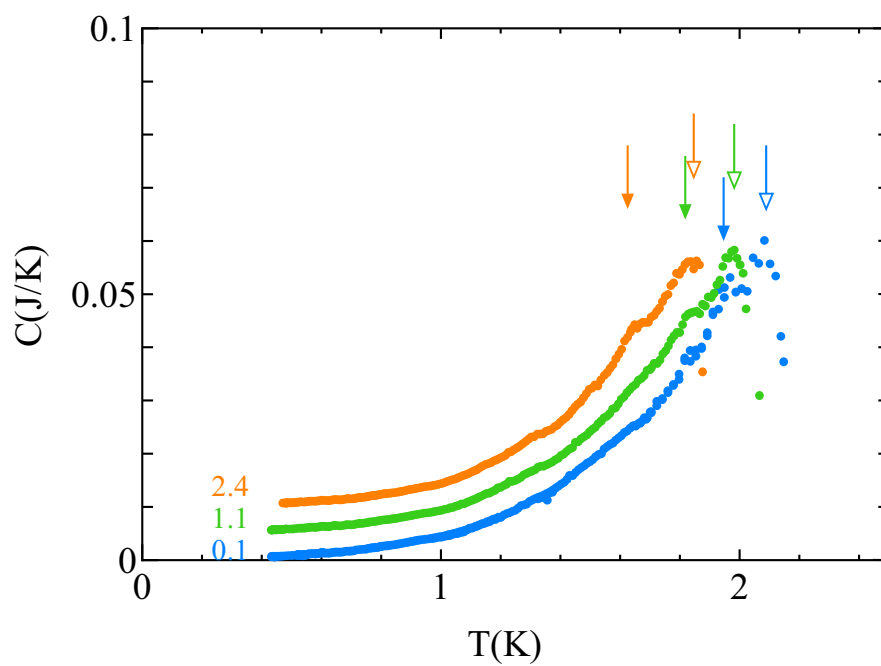


図 6.3: 全熱容量からバルクの寄与を差し引いた熱容量. 見やすいように縦軸はシフトしている. 細孔外 ^4He の熱容量の異常温度を矢印で示す.

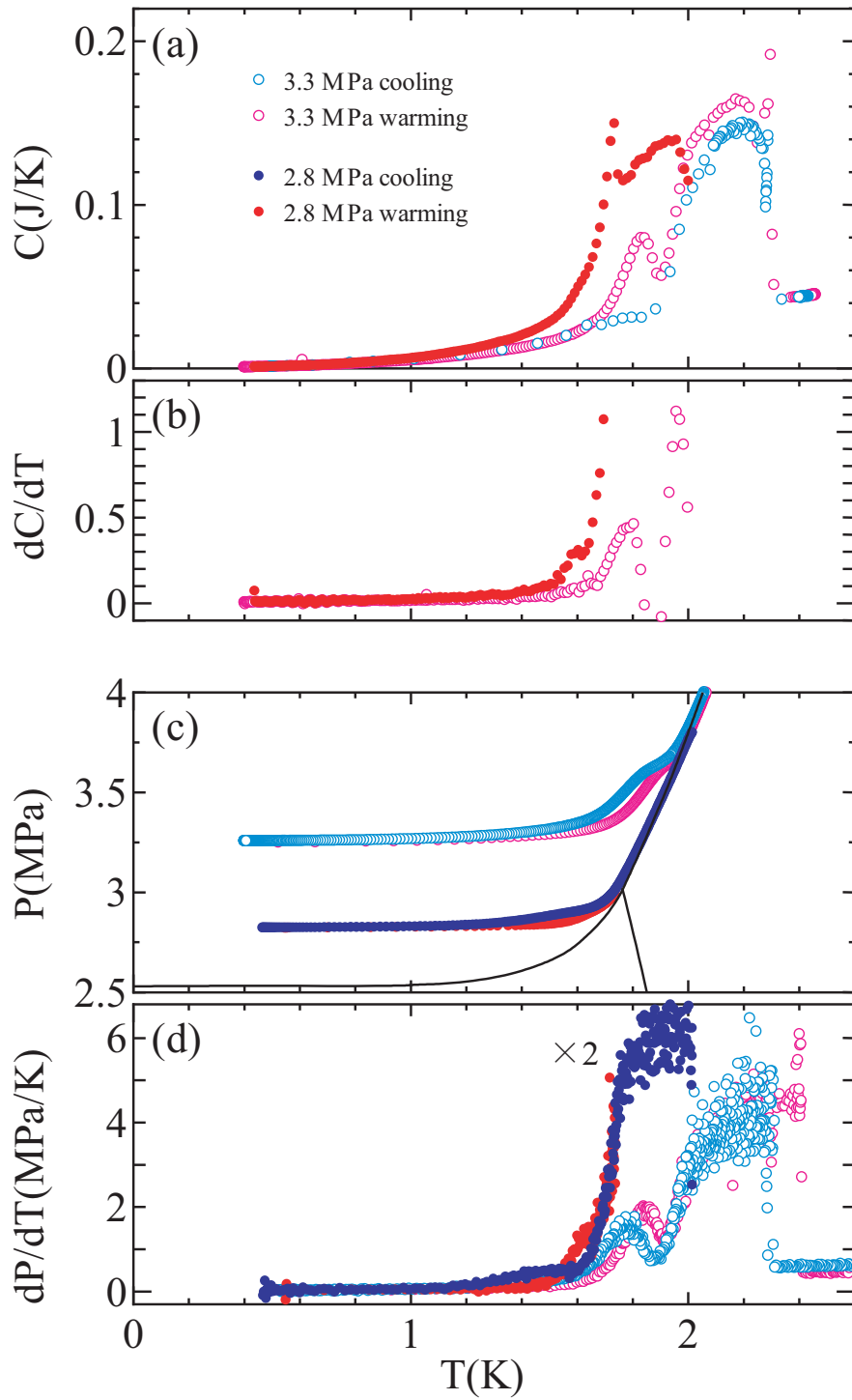


図 6.4: 十分低温で 3.3, 2.8 MPa における (a) 熱容量の温度依存性と (b) dC/dT , (c) 圧力 P の温度依存性と (d) dP/dT .

6.2 FSM12 細孔内液体 ^4He の熱容量

細孔中の熱容量の異常の有無を確かめるために、Cernox 温度計を用いて詳細な熱容量測定を行った。実験前に校正された温度換算表 (抵抗値対温度) にとびやばらつきが確認されたため、詳細に温度計の抵抗値を測定し、単純な曲線を用いて温度に換算したデータから熱容量を求めた。また、加圧下液体の実験後、セルと温度ステージを 10 K で 12 日アニールし、真空引き後に冷却し、ある程度の ^4He が吸着した低面密度条件でも同様に熱容量を求めた。この低面密度条件は、膜厚を直接測ることはできないが、Matsushita らの実験 [46] と比較し、おおまかな膜厚を知ることができる。

図 6.5 は低面密度条件の熱容量で、Matsushita らの観測した既知の面密度下の熱容量と比較したものである。まず、今回行った空セルの結果 (図 3.24) と比べると、全温度領域において明らかに熱容量が大きく、セル内に ^4He が存在すると考えられる。次に、Matsushita らの薄膜の比熱測定結果と比較すると、1.24 層-1.72 層吸着の膜厚とおおむね一致したため、これらと同様の膜厚である可能性がある。さらに彼らの結果では、1.49, 1.72 層は 0.5 K 以上で熱容量は温度上昇に対し加速的に増加するが、1.24 層では増加がゆるやかなことから、本実験の低面密度条件の膜厚は 1.49 層より薄く、1.24 層に近い液層がない不活性層であると考えられる。

図 6.6(a) に、1.3 K 付近の熱容量の詳細を示す。2.4 MPa と不活性層の Cernox 温度計を用いた測定結果について多項式フィットし、その差を図 6.6(b) のようにプロットすると、0.2 mJ/K 程度の振幅をもつピークがあることがわかった。一方、この異常は $\pm 5\mu\text{ J/K}$ の実験精度の範囲内で不活性層では観測されない。様々な圧力で行った RuO_2 温度計を用いた測定結果については、ばらつきが大きいため隣接平均し図 6.6(c) のようにプロットすると、同程度の振幅をもつピークが同じ温度域に観測された。

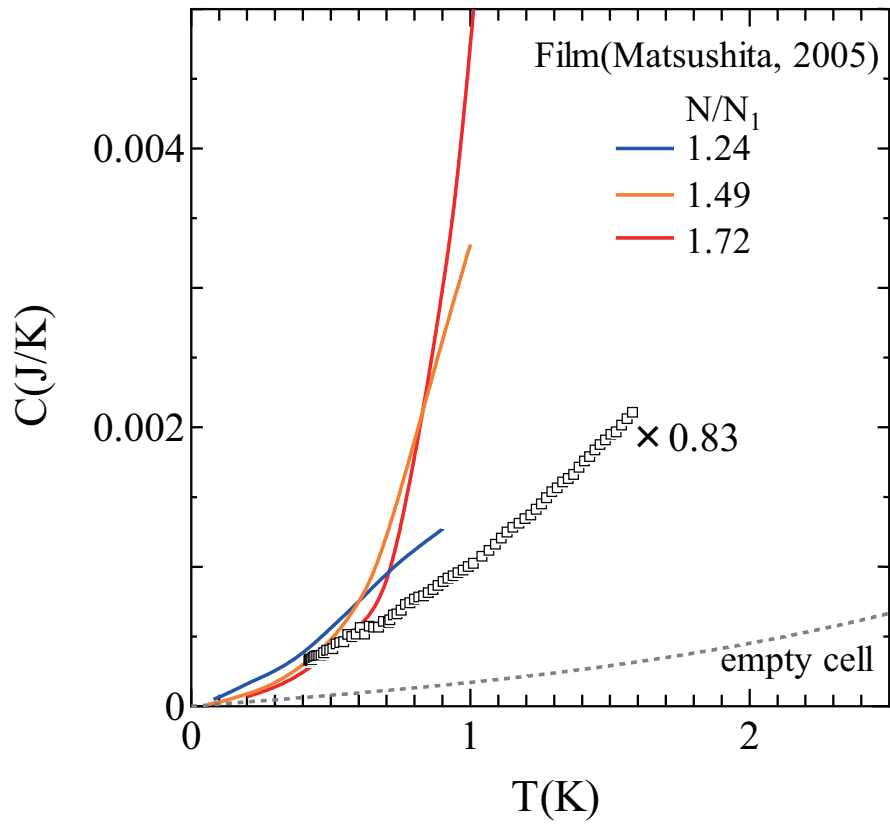


図 6.5: 低面密度条件の熱容量(□). 空セルの結果は破線で示す. Matsushita らの結果 [46] と比較するため, 表面積比を乗じた. 実線が Matsushita らの行った各面密度での熱容量の結果.

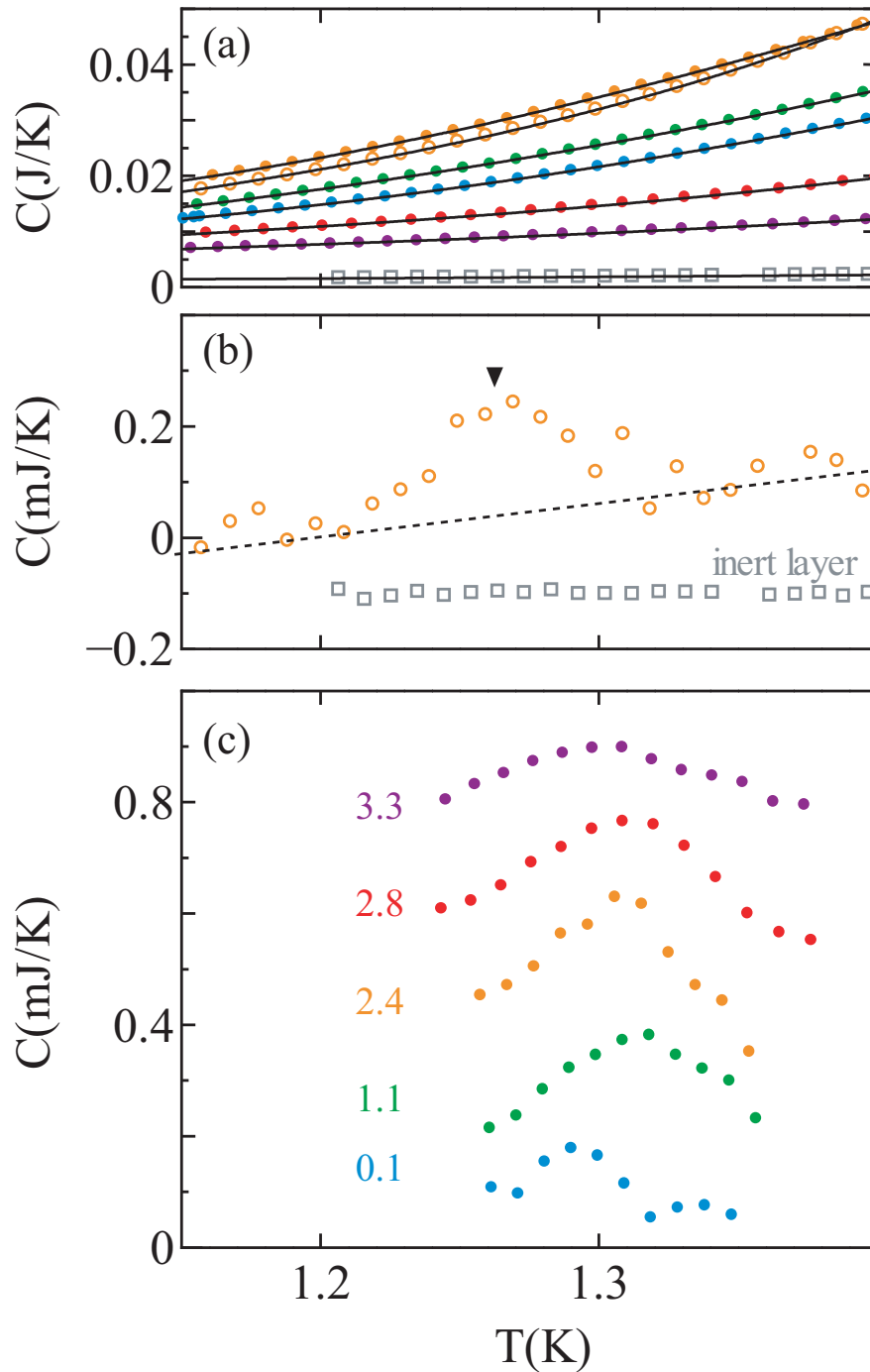


図 6.6: (a) 様々な圧力における 1.3 K 付近の全熱容量. 不活性層の膜厚の結果も示す. Cernox 温度計を用いた詳細な測定結果 (\square , \circ) と RuO_2 温度計の結果 (\bullet) を示す. 実線はこの温度域に行った多項式フィット. (b) 2.4 MPa と不活性層について, Cernox 温度計を用いた結果からフィット曲線の値を差し引いた. (c) 様々な圧力において, RuO_2 温度計の結果からフィット曲線の値を差し引いた. ばらつきが大きいため, 3点隣接平均している.

6.3 FSM12 と FSM16 細孔内液体 ^4He の超流動

FSM16 細孔内液体 ^4He の超流動は2段階に成長し、1段階目に熱容量の異常がある。一方、前節で FSM12 細孔内では小さな熱容量の異常があることがわかった。FSM12 セル全体の超流動は図 2.18 のようになる。ここからバルクを差し引き、細孔内液体 ^4He の超流動を明らかにする。

以下に、FSM12 のねじれ振り子測定の結果の詳細を示す図 6.7 に 0.1 MPa において、全超流動密度から細孔外バルクの超流動密度を差し引いて求めた細孔内超流動密度 ρ_{sch} を示す。細孔内を N_2 で穴埋めした(細孔外バルクのみ)の測定を行っていないため、バルクのデータは計算より求められた文献値を定数倍したものをを用いた。倍率は差し引いた後の高温側の成長が全て差し引けるように定めた。図 6.7(b) より、温度を下げると ρ_{sch} は 1.25 ± 0.03 K でゆるやかに立ち上がることがわかった。また、 $d\rho_s/dT$ の温度依存性をプロットし、各圧力でも 0.1 MPa と同様の $d\rho_s/dT$ の立ち上がりが観測されることがわかった。この $d\rho_s/dT$ の異常は加圧するとやや低温へ移動し、その移動量は 0.1 から 2.45 MPa では 70 mK 程度であった。各圧力の図 6.6 の熱容量のピークと $d\rho_s/dT$ の異常はほぼ等しい温度である。よって、FSM12 細孔内液体 ^4He には 1.2-1.3 K で熱容量の異常があり、 ρ_{sch} が立ち上がるということが明らかになった。

バルク ^4He の超流動転移では飽和蒸気圧下において、超流動密度 ρ_s は絶対零度での超流動密度 ρ_{s0} 、 $t = 1 - T/T_c$ を用いて

$$\rho_s = \rho_{s0} t^{-\nu} \quad (6.3.1)$$

となり、 ν は -0.67 であることが知られている。これは、 ^4He の超流動転移が 3DXY ユニバーサリティークラスに属することに起因している。 ν は転移点近傍の超流動密度のフィッティングにより見積もることができ、制限空間中 ^4He の超流動転移では、Reppy らが Vycor 中 ^4He の ν を報告している [47]。Reppy らのフィッティング範囲は $t < 0.015$ としているが、 $t < 0.15$ 付近までデータはフィッティング曲線にのり、Vycor 中 ^4He であってもバルクと同じユニバーサリティークラスに属すると主張した。

FSM12 のねじれ振り子測定の計測間隔は少々荒いが、図 6.8(b) のよう $t < 0.134$ 付近までのフィッティングで ν を見積もると、 $\nu = 1$ とすると、直線に乗ることがわかった。

FSM16 の 2 重連成ねじれ振り子実験 (4 章参照) の細孔中を N_2 で穴埋めしたバルクのみ の応答とバルクを差し引き細孔中のみ の応答について、同様に ν を図 6.9 のように見積もった。細孔中のみ の応答は、高温側の立ち上がりを T_c とし、超流動の成長を外挿した量を全体の ρ_{s0} とした。 N_2 で穴埋めした FSM 粉末間 ^4He の応答は $\nu = 0.67$ の直線にのり、一般的なバルク ^4He と同様に 3DXY ユニバーサリ

ティックラスに属することがわかった。一方，細孔中のみの応答は $\nu = 1$ の直線に乗り，FSM12と同様のユニバーサリティーである可能性がある。

FSM12とFSM16の結果から，細孔中 ^4He の超流動応答の緩やかな成長には，比熱の異常を伴うことが明らかになり，バルク ^4He やVycorガラス中 ^4He とは異なるユニバーサリティーである可能性がある。 $\nu = 1$ のユニバーサリティーについて，例えば1次元XYモデルがある。Yamashitaらは有限長の1次元XYモデルにおいて，有限温度でヘリシティモジュラスが立ち上がると計算[10]しており，細孔中 ^4He の超流動応答の緩やかな成長にあたる成分は1次元XYモデルの可能性はある。ただし，この議論は転移点近傍まで計測して， ν を求めるために，より高精度の実験をする必要がある。

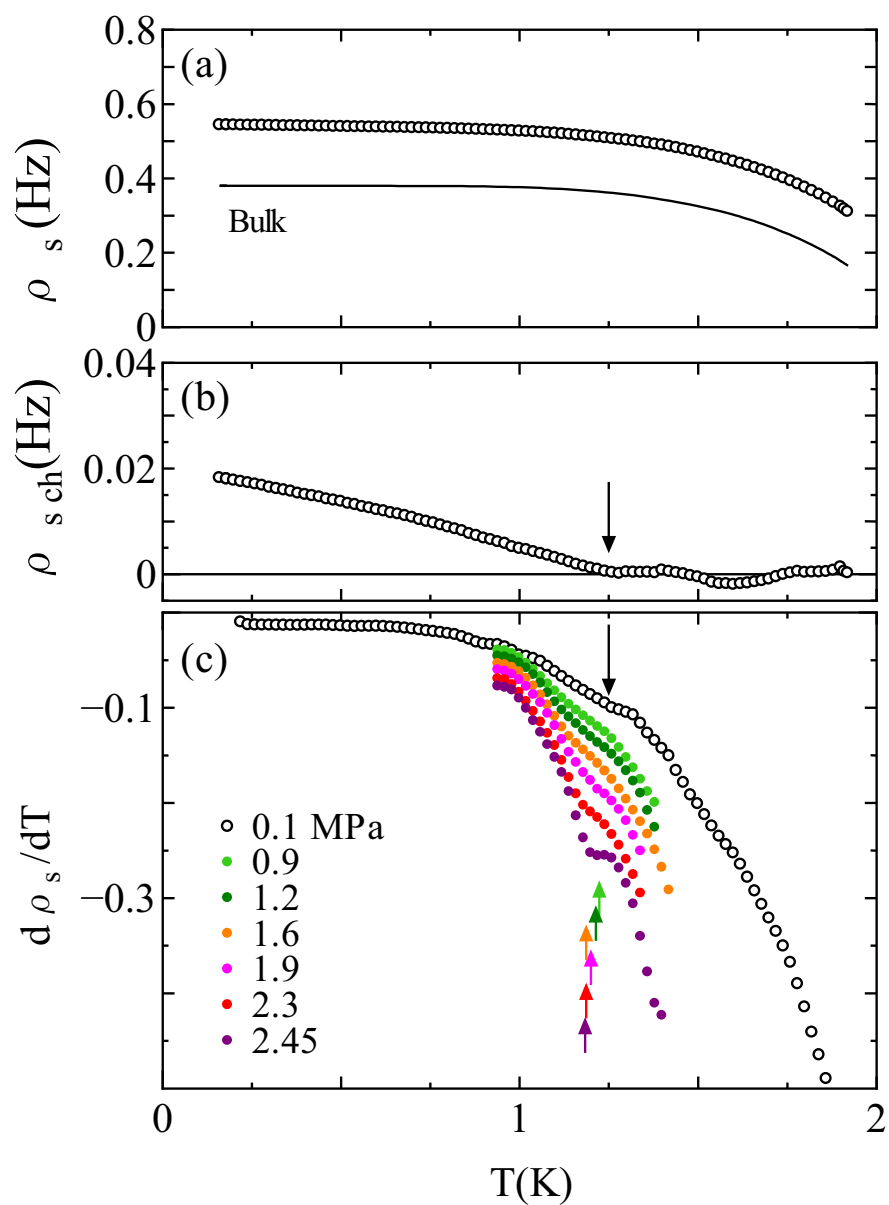


図 6.7: FSM12 のねじれ振り子測定の結果の詳細. (a) 全超流動密度と細孔外バルクの超流動密度. バルク成分は計算値を定数倍したもの. (b) 全密度から細孔外密度を差し引いて求めた細孔内超流動密度 ρ_{sch} . 矢印は立ち上がり温度を示す. (c) 各圧力における $d\rho_s/dT$ の温度依存性. 0.1 MPa の ρ_{sch} の立ち上がり温度では $d\rho_s/dT$ に異常が観測された. 同様の $d\rho_s/dT$ の異常は各圧力で観測される.

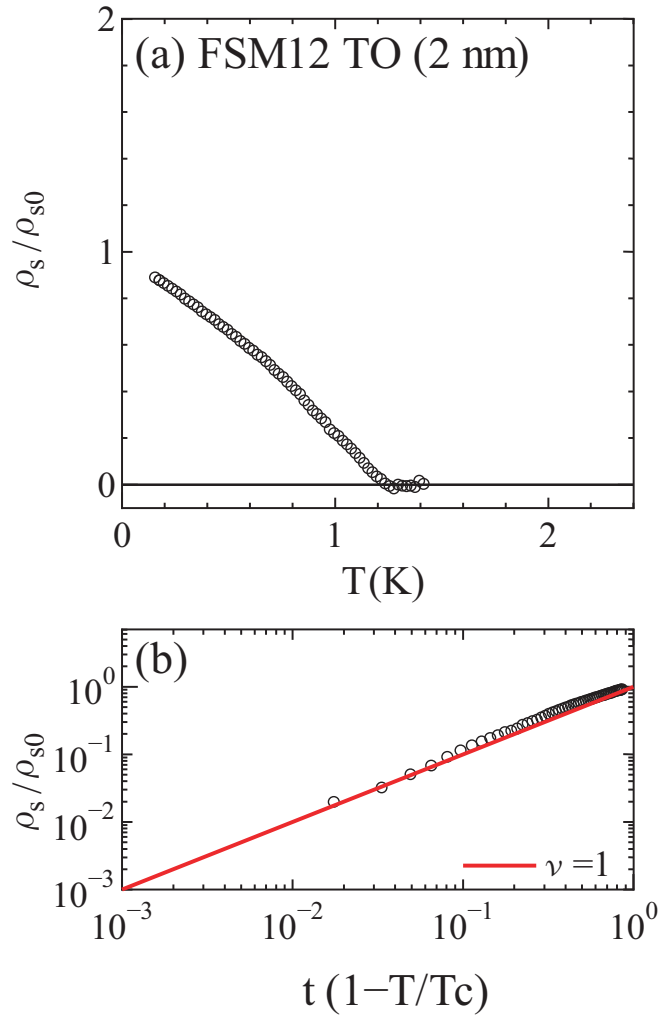


図 6.8: FSM12 細孔中 ^4He の (a) 実温度に対する ρ_{s0} で規格化した超流動密度, (b) ρ_s / ρ_{s0} 対 t の両対数プロット.

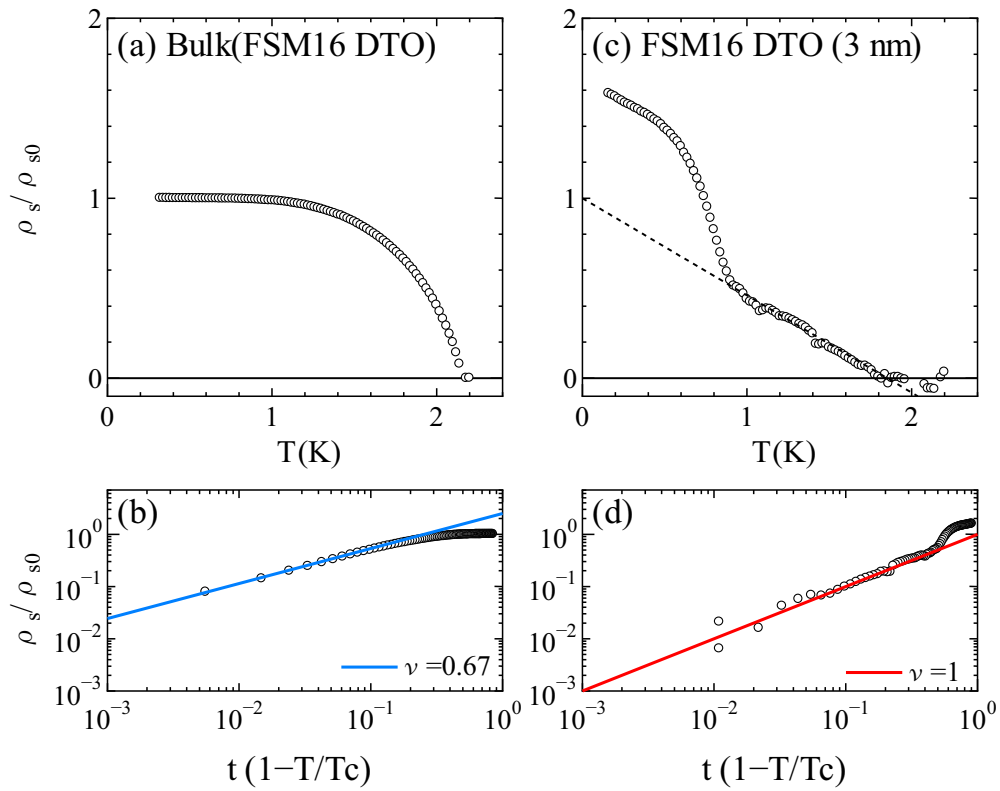


図 6.9: 2重連成ねじれ振り子実験における粉末間バルク ^4He の (a) 実温度に対する ρ_{s0} で規格化した超流動密度, (b) ρ_s / ρ_{s0} 対 t の両対数プロットと, 細孔中 ^4He の (c) 超流動密度, (d) ρ_s / ρ_{s0} 対 t .

第7章 まとめ

本研究では、1次元細孔中液体⁴Heの特徴的な散逸ピークを伴う超流動転移の性質を明らかにするため、2重練成ねじれ振り子と試料を用いて細孔径3 nm細孔中⁴Heの以下の実験条件で測定を行い、結果を得た。

1. 加圧下の液体⁴He

- 観測周波数を2000 Hzから500 Hzに変えると、超流動応答と吸収ピークは低温側で観測され、0.13 MPaでは40 mKシフトし、加圧するとシフト量が拡大した。
- 細孔内⁴Heの超流動応答は動的な現象であることがわかった。観測された振る舞いはTL液体モデルに基づいた理論と定性的に一致した。

2. 薄膜から加圧下液体に至るまで

- およそ平均膜厚19 atoms/nm²まで、導入した⁴Heは細孔内へ優先的に吸着され、およそ19 atoms/nm²以降は細孔内がほぼ埋まって、細孔外膜が厚くなっていく様子が観測された。
- 平均膜厚21 atoms/nm²における測定では、高温側で薄膜のKT転移による ΔF の急な立ち上がりと ΔQ^{-1} のピークが観測され、低温で細孔内の応答と思われる ΔF の緩やかな立ち上がりと ΔQ^{-1} の大きなピークが観測された。
- 周波数を下げると、平均膜厚18.5 atoms/nm²では ΔF の立ち上がりと ΔQ^{-1} のピーク温度に変化が観測されないのに対し、平均膜厚21 atoms/nm²では大きな ΔQ^{-1} のピークは約20 mK低温に移動し、厚い膜厚では周波数に依存することもわかった。

3. 微量な³Heを導入した³He-⁴He混合液体

- 0.13 MPaの2 kHzの測定では、³He濃度の増加に比例して、超流動応答は低温側へ移動し、4.0 at%では70 mK低下した。また、この低温への移動は加圧によって増大することはなかった。

- ^3He 濃度の増加による超流動応答の低下はバルクの超流動転移温度の低下と比較して、著しく大きくはない。
- 周波数依存性は ^3He 不純物により大きく変化しないことがわかった。

細孔中の液体 ^4He の熱容量について、細孔径依存性を明らかにするために、細孔径 2 nm 細孔中液体 ^4He の熱容量測定を行い、以下の結果を得た。

- 細孔外のオープンスペースに、サイズ効果によって熱容量の異常温度が T_λ から空間があることがわかった。
- 1.3 K 付近に細孔内 ^4He の微小な熱容量の異常を観測し、同様の温度で超流動密度が立ち上がることがわかった。これより、超流動応答の緩やかな立ち上がりには、熱容量の異常が伴うことが明らかになった。
- FSM12 と FSM16 細孔中 ^4He は、バルク ^4He と異なるユニバーサリティの可能性はある。

謝辞

最後になりますが、この論文の執筆にあたり、お世話になった方々に感謝の意を表します。

まず、主任指導教員である鈴木勝教授にお礼申し上げます。学部卒業研究からの6年間、忍耐強く懇切な御指導をしていただきました。また、研究室自作の冷凍機を扱い、先生の指導の元で実験セルを自作でき、ものづくりの奥深さを知ることができました。心より感謝申し上げます。

審査委員を引き受けてくださった阿部浩二教授、尾関之康教授、斎藤弘樹教授、小久保伸人准教授、松林 和幸准教授には、本論文の作成にあたり、貴重な助言をいただきました。本当にありがとうございます。

株式会社豊田中央研究所の稲垣伸二氏には多孔質試料FSMを提供していただきました。名古屋大学の和田信雄教授、東京大学物性研究所の押川正毅教授には投稿論文の執筆や学会発表の際に議論していただきました。また、以上の方の功績がなければこの研究は始まっていなかったと思います。心より感謝申し上げます。

鈴木研究室の桐山淳子(旧姓谷口)助教にも、研究や進路について親切な助言をいただきました。また、佐々木成朗教授、中村仁准教授、東京医科歯科大学の檜枝光憲教授にも、声をかけていただき、励ましていただきました。ありがとうございました。

来年度30周年を迎える鈴木研究室には、博士の学位を取られた先輩方をはじめ、多くの卒業生がいらっしゃいます。身近に目標とする人がたくさんいるのは大変恵まれた環境であったと感じます。さらに、研究室在籍中関わっていただいた先輩、後輩の皆様にも感謝したいと思います。健全な6年間を過ごすことができたのも皆様のおかげです。

日本物理学会超低温領域の先生方、学生の方にも感謝申し上げます。学会発表に建設的な質問コメントをいただきました。口頭発表ということもあり、半年に一度適度な緊張感を持ってメリハリある研究にできたと思います。

研究設備センター低温室の小林利章さんには、実験を行うにあたり大量の寒剤を安定的に供給していただきました。また、小林さんの元で低温室業務の一端を担ったことは、ヘリウムなどの寒剤や冷凍設備を取り巻く現状を知ることができた意味でも、有意義な時間であったと思います。本当にありがとうございます。

本研究の一部は公益財団法人日本科学協会の笹川科学研究助成により実施したものです。改めて御礼申し上げます。

最後に、博士過程に進むきっかけを与えてくれた父と料理を通して健康を維持する術をおしえてくれた母に感謝申し上げます。

付録A 熱容量セル設計図

熱容量測定セルと熱浴と輻射熱シールドを兼ねた部品の設計図をしめす。

セル ダイアフラム部品

セル ペレット容器部品

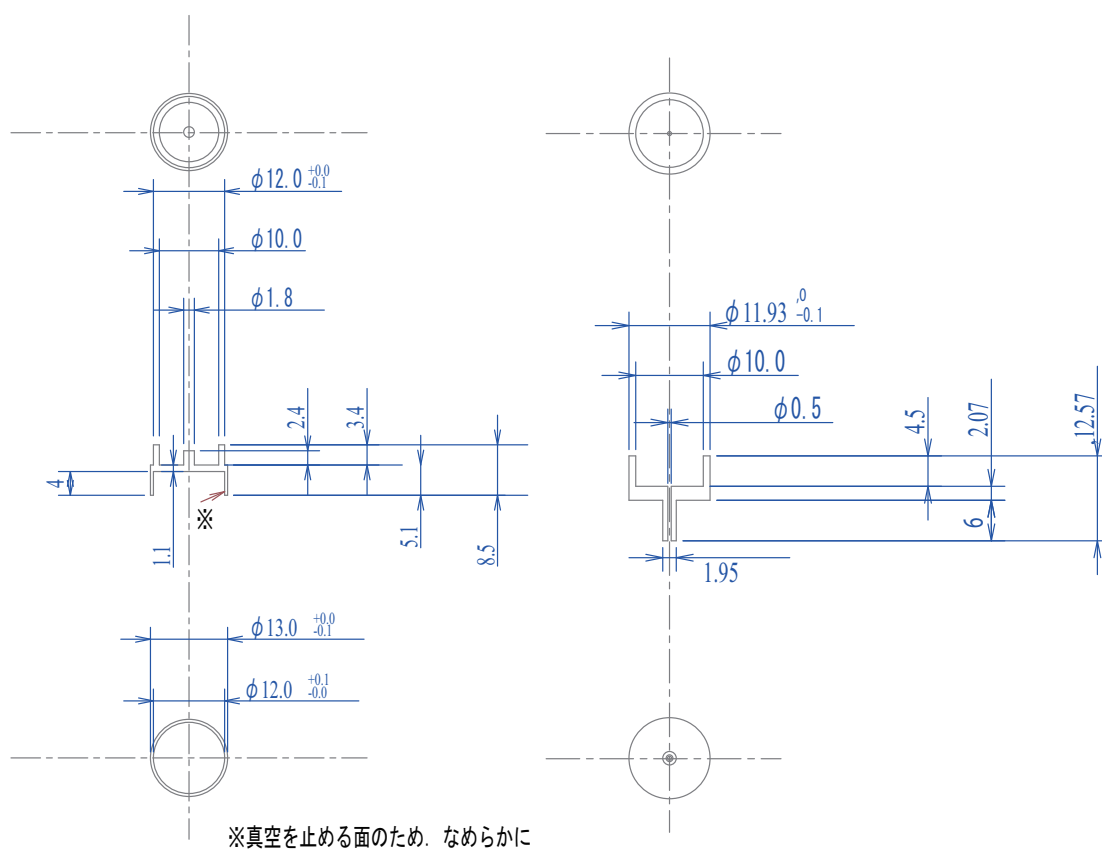
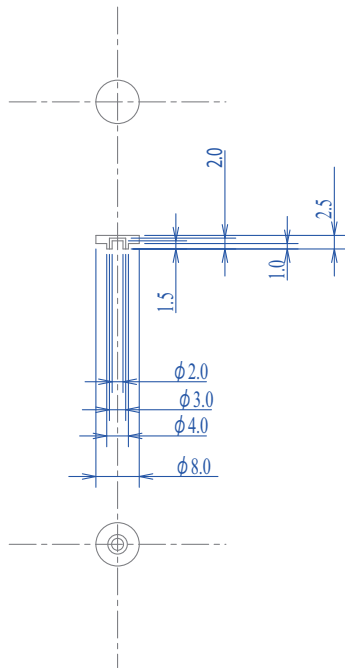
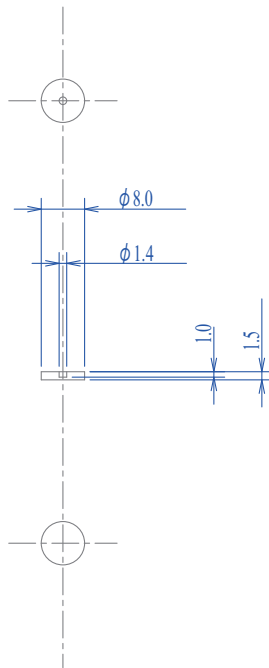


図 A.1: 熱容量セル設計図 1

セル 可動電極部品



セル 固定電極部品



セル 固定電極固定キャップ

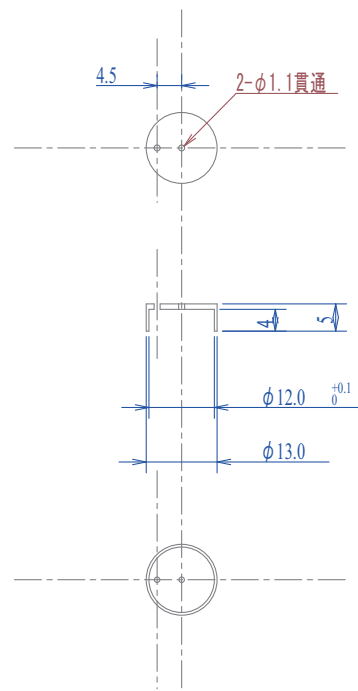


図 A.2: 熱容量セル設計図 2

温度ステージ兼シールド上部部品

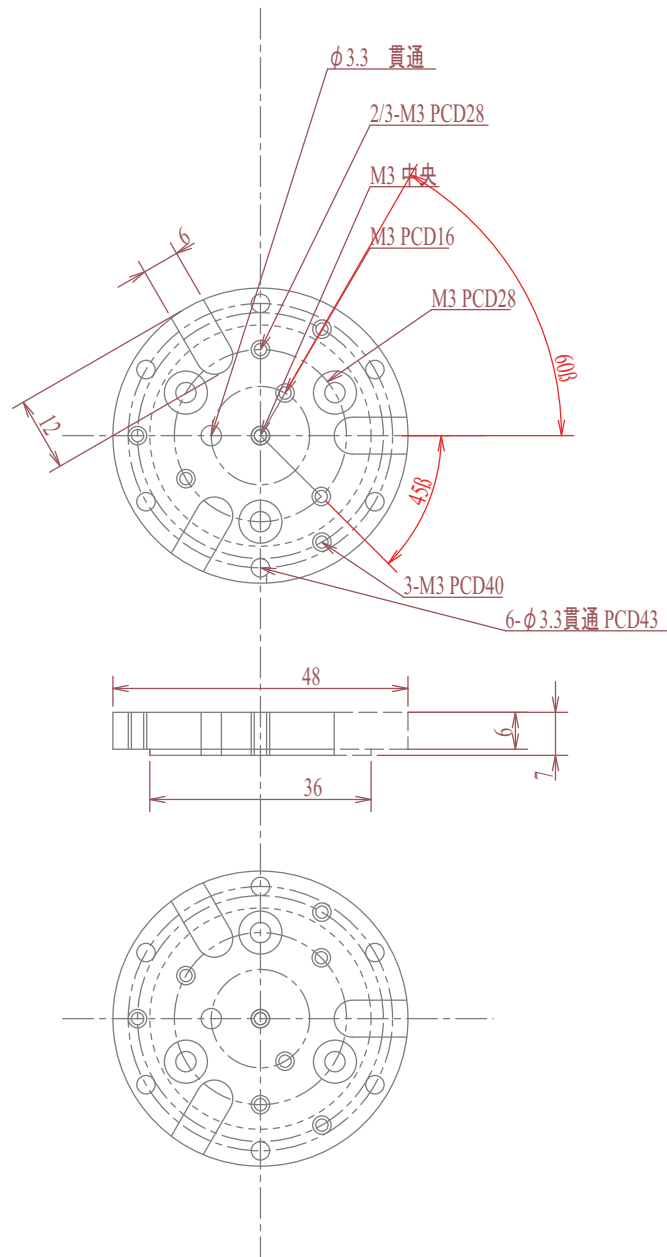


図 A.3: 熱容量セル設計図 3

シールド 組み立て図

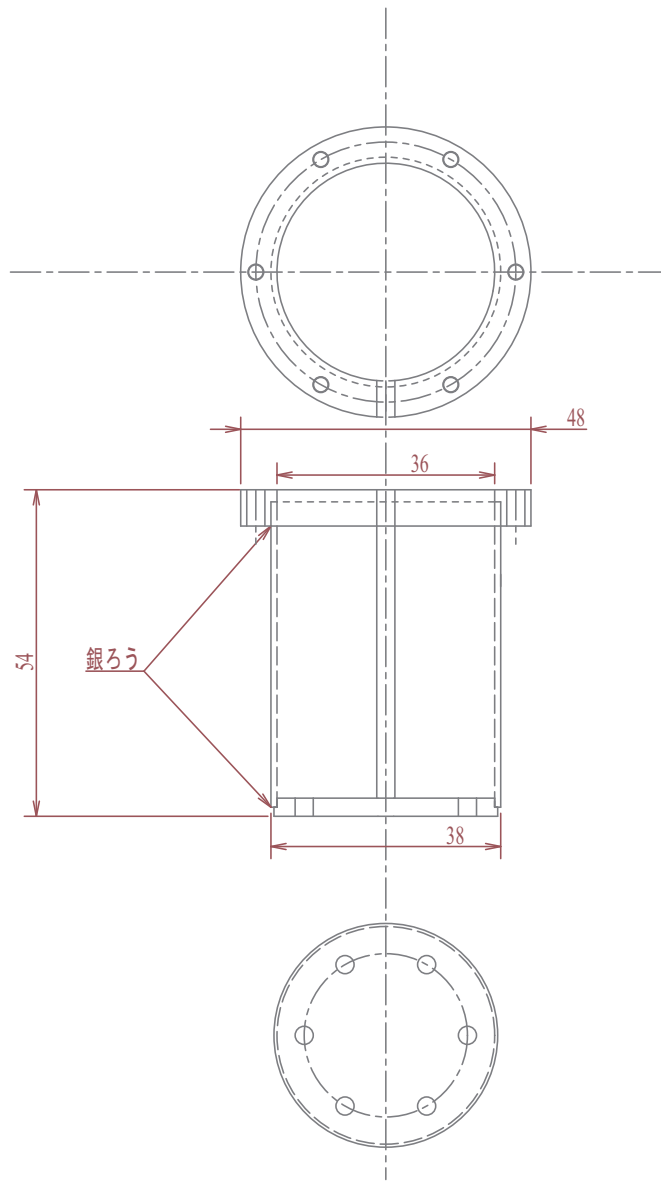
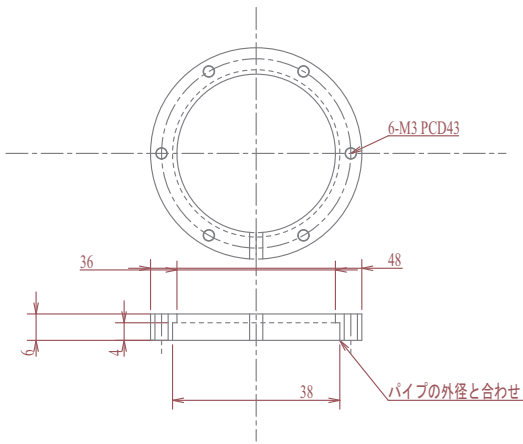
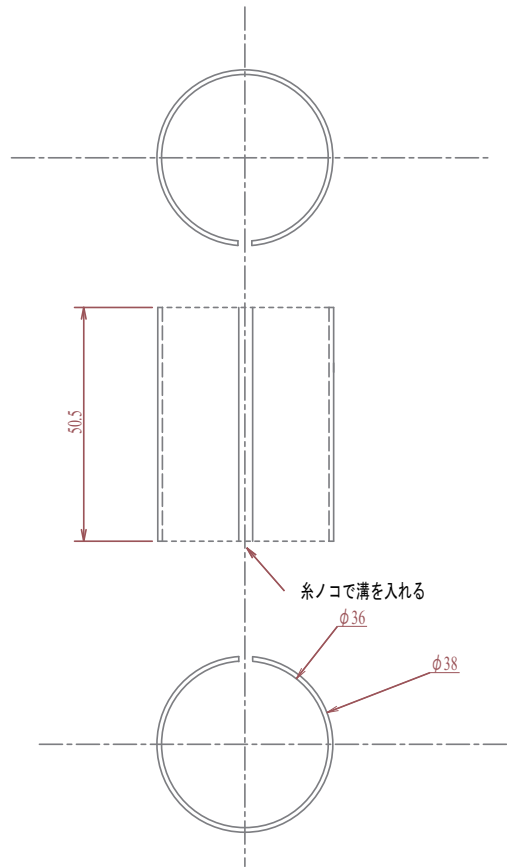


図 A.4: 熱容量セル設計図 4

シールド 上部フランジ部品



シールド ボディ部品



シールド 下部部品

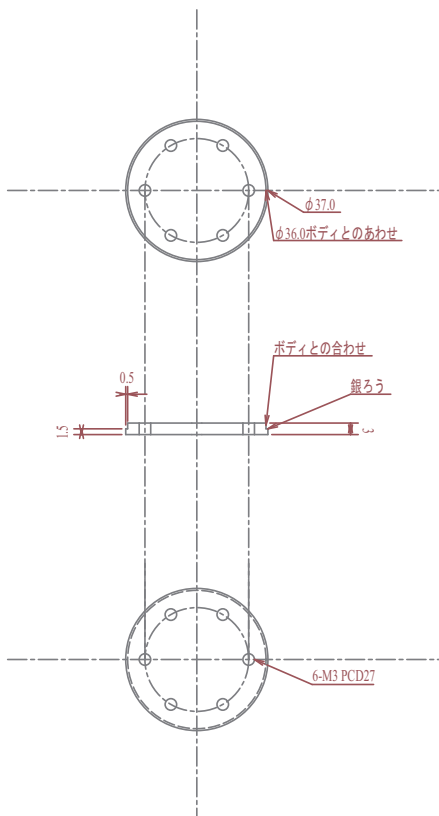


図 A.5: 熱容量セル設計図 5

付録B FSMパウダー間の希薄な³He-⁴Heにおける第2音波の共鳴

FSM16 試料中希薄な³He-⁴Heにおける2重連成ねじれ振り子実験の f_h モードにおいて、低温域で周波数変化と ΔQ^{-1} の異常を観測した。図B.1のように、³He濃度が4.0 at%の時、それぞれの圧力で観測された f_h の異常を示した。

加圧により吸収ピークが高温側へシフトし、吸収ピーク温度付近の共振周波数の増加は温度が下がると大きくなっていることがわかった。この異常はパウダー間の³He-⁴Heの第2音波の共鳴によるもとを考えている。

³He-⁴He 混合液体では、低温でも常流動成分が少し残っている。本実験では、FSM16パウダー間のオープンスペースは μm のオーダーであり、 f_h モードの4.0 at%における侵入長 $l = (2\eta/\rho_n\omega)^{1/2}$ は $l \sim 3 \times 10^{-6} \text{ Pa}\cdot\text{s}$ [48]とすると、 $\sim 10 \mu\text{m}$ と見積もれる。それゆえ、パウダー間のねじれ振動に大半の常流動成分が追従する。今回の場合、2流体モデルにおける各成分の運動方程式は、

$$\rho_s \frac{\partial \vec{v}_s}{\partial t} = -\frac{\rho_s}{\rho} \nabla P + \rho_s \sigma \nabla T, \quad (\text{B.0.1})$$

$$\rho_n \frac{\partial \vec{v}_n}{\partial t} = -\frac{\rho_n}{\rho} \nabla P - \rho_s \sigma \nabla T + \rho_n R (\vec{V} - \vec{v}_n). \quad (\text{B.0.2})$$

ここで、 ρ_s, ρ_n と \vec{v}_s, \vec{v}_n はそれぞれ超流動成分と常流動成分の密度と音速である。また、式B.0.2における右辺の第3項はパウダー間の抵抗力である。 \vec{V} はパウダー間の音速を意味し、 R は位置に依存する係数である。全密度 ρ とエントロピー σ の保存則を用いた簡単な計算で、 $\partial\rho/\partial t = -\nabla \cdot (\rho_s \vec{v}_s + \rho_n \vec{v}_n)$ と $\partial(\rho\sigma)/\partial t = -\rho\sigma \nabla \cdot \vec{v}_n$ を得られ、

$$\frac{\partial^2 \sigma}{\partial t^2} = \frac{\rho_s \sigma^2}{\rho_n} \left(\frac{\partial T}{\partial \sigma} \right)_\rho \nabla^2 \sigma - \frac{\rho_s}{\rho} R \frac{\partial \sigma}{\partial t} - \frac{\rho_s}{\rho} (\vec{V} - \vec{v}_n) \cdot \nabla R, \quad (\text{B.0.3})$$

と書ける。ここで、 v_n は $\nabla \cdot \vec{v}_n = -(\partial\sigma/\partial t)/\sigma$ のように σ と結びついている。ペレットの円筒対称性より、円筒ペレットの半径と高さをそれぞれ a と d とし、

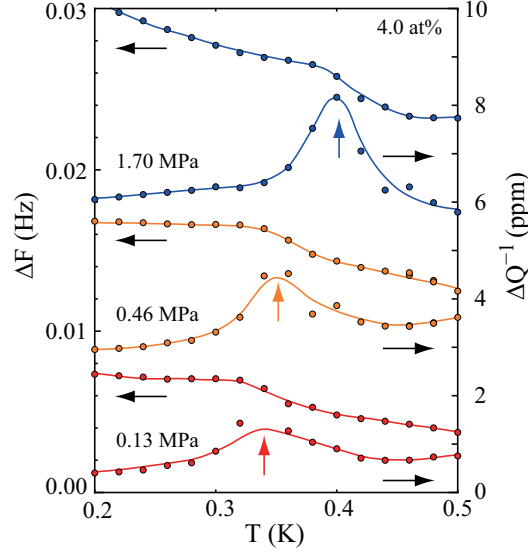


図 B.1: ${}^3\text{He}$ 濃度が 4.0 at% の時, それぞれの圧力下で観測された f_h の異常.

σ と R はベッセル関数で表すと

$$\sigma = \sigma_0 + \sum_{m,n} \sigma_{mn}(t) J_m \left(\frac{\alpha_{mn}}{a} r \right) e^{im\theta} \cos \left(\frac{\pi}{d} z \right), \quad (\text{B.0.4})$$

$$R = R_0 + \sum_{m,n} R_{mn} J_m \left(\frac{\alpha_{mn}}{a} r \right) e^{im\theta} \cos \left(\frac{\pi}{d} z \right). \quad (\text{B.0.5})$$

となる. 簡単のため, z 方向は基本波を選んだ. 式 B.0.4 と B.0.5 を B.0.3 へ代入し, 微量である高次の項を無視すると,

$$\begin{aligned} \frac{d^2 \sigma_{mn}(t)}{dt^2} + \frac{\rho_s}{\rho} R_0 \frac{d\sigma_{mn}(t)}{dt} + C_2^2 \left(\frac{\alpha_{mn}^2}{a^2} + \frac{\pi^2}{d^2} \right) \sigma_{mn}(t) \\ = -im \frac{\rho_s}{\rho} R_{mn} \sigma_0 \alpha \frac{d\phi}{dt}, \end{aligned} \quad (\text{B.0.6})$$

を得られる. ここで, $C_2 = \sqrt{\frac{\rho_s \sigma^2}{\rho_n} \left(\frac{\partial T}{\partial \sigma} \right)_\rho}$ は第 2 音波の音速で, ϕ はねじれ振り子のねじれ角である. ここで, パウダー間の常流動成分の平均音速 $\langle v_n \rangle$ は \vec{V} と結びつき, $\langle v_n \rangle = (1 - \alpha) \vec{V}$ 書け, σ と ρ が連結していないとする.

式 B.0.6 より, 第 2 音波はねじれ振り子の抵抗力の不均一性によって発生することがわかる. 共振角周波数を $\omega^2 = C_2^2 (\alpha_{mn}^2 / a^2 + \pi^2 / d^2)$ とする.

一方，ねじれ振り子は抵抗力に作用され，運動方程式は，

$$I \frac{d^2 \phi}{dt^2} + 2I \Gamma \frac{d\phi}{dt} + I \Omega^2 \phi = N e^{i\omega_e t} + \int_0^{2\pi} d\theta \int_{-d/2}^{d/2} dz \int_0^a r dr [r \rho_n R (\vec{V} - \vec{v}_n)_\theta], \quad (\text{B.0.7})$$

書ける．ここで， I は慣性モーメント， Γ は固有の減衰項， Ω は固有振動数とし， $N e^{i\omega_e t}$ は外力項とした．右辺第2項は drag force に起因する力のモーメントである．第2音波が (m, n) モードによって発生するとき，運動方程式は，

$$I \frac{d^2 \phi}{dt^2} + \left(2I \Gamma + \alpha R_0 \rho_n \frac{\pi a^3 d}{2} \right) \frac{d\phi}{dt} + I \Omega^2 \phi = N e^{i\omega_e t} + i \frac{\pi \rho_n d}{\sigma_0} e^{i\omega_e t} \int_0^a \left[\sum_{m, n, n'} R_{mn'} \sigma_{mn} J_m \left(\frac{\alpha_{mn'} r}{a} \right) J_m \left(\frac{\alpha_{mn} r}{a} \right) \right] r^3 dr, \quad (\text{B.0.8})$$

と書き直すことができる．エントロピーの複素振動振幅を σ_{mn} [$\sigma_{mn}(t) = \sigma_{mn} e^{i\omega_e t}$] とした．ねじれ振り子の共振は第2音波によって変調させられることがわかった．

^3He - ^4He 混合液体の第2音波は系統的に調べられている [49]．低温で，音波は ^3He 濃度の増加に伴ってやや減少し，4.0 at%，0 MPa 時の 0.3 K での音速は ~ 23 m/s であった．また，圧力増加と温度降下によって音速は減少することもわかっている．

共振モードを $m = 1$ ， $n = 1$ とすると，共振周波数とペレットのサイズ (a は 6 mm， d は 3 mm) より， $C_2 = 9.6$ m/s となる．パウダー間の複雑な経路を常流動成分が均一に動くとする，単純にペレットのサイズで音速を求めるのは適当でない．見積もりは文献値の半分程度であるが，ほぼ一致していると判断できる．また，温度降下を起因とした音速の減少による周波数の増加という振る舞いは第2音波の性質と定性的に一致する．さらに，圧力依存は加圧による音速の減少で説明できる．それゆえ， ^3He - ^4He 混合液体の第2音波の共鳴が起因となって超流動応答に依存が観測されたと結論できる．

付録C 2重連成ねじれ振りの両モードの感度比の評価

FSM16における純粋な液体⁴Heの0.13 MPa加圧下での超流動応答 $\Delta f/f$ (図5.3)において、 T_0 より高温側と最低温の差が等しくなるようになるように6.62倍した。同一の超流動応答を計測していることから、 f_l モードの $\Delta f/f$ と ΔQ^{-1} は f_h に比べて6.62倍小さく観測される。この感度比が適切か評価を行った。

まず、共振周波数の式より、以下の2式を導くことができる。

$$\frac{f_h}{f_l}(c_1, c_2) = \sqrt{\frac{c_1 + c_2 + 1 + \sqrt{(c_1 + c_2 + 1)^2 - 4c_1c_2}}{c_1 + c_2 + 1 - \sqrt{(c_1 + c_2 + 1)^2 - 4c_1c_2}}} \quad (\text{C.0.1})$$

$$\frac{df_h}{df_l} \frac{f_h}{f_l}(c_1, c_2) = \frac{\sqrt{(c_1 + c_2 + 1)^2 - 4c_1c_2} + c_1 - c_2 + 1}{\sqrt{(c_1 + c_2 + 1)^2 - 4c_1c_2} - (c_1 - c_2 + 1)} \quad (\text{C.0.2})$$

実測値より周波数比は $f_h/f_l = 2055 \text{ Hz}/505 \text{ Hz}$ 、感度比は $df_h/f_h : df_l/f_l = 6.62 : 1$ とすると、

$$\frac{f_h}{f_l} - \frac{2055}{505} = 0 \quad (\text{C.0.3})$$

$$\frac{df_h}{df_l} \frac{f_h}{f_l} \cdot \left(\frac{f_l}{f_h}\right)^2 - 6.62 = 0 \quad (\text{C.0.4})$$

と書け、この2つの関数より c_1 は7.6、 c_2 は0.60であった。一方、ねじれ振りの設計から c_1 は7.96、 c_2 は0.78であり、同様の値であったことから、感度比が適切であると判断した。

参考文献

- [1] F. London, *Superfluids*, Vol.2 (Wiley, 1954).
- [2] K. R. Atkins, *Liquid Helium* (Cambridge University Press, 1959).
- [3] L. Tisza, C.r. hebd. Séanc. Acad. Sci., Paris, **207**, 1035, (1938).
- [4] L. D. London and E. M. Lifshitz, E.M., *Fluid Mechanics*(Pergamon Press, 1959).
- [5] E. L. Andronikashvili, J. Phys. USSR, **10**, 201 (1946).
- [6] 山田 一雄・大見 哲巨 共著,『超流動』, 培風館, (1995).
- [7] , J. S. Brooks, B. B. Sabo, P. C. Schubert and W. Zimmermann Jr, Phys. Rev. B, **19**, 4524 (1979).
- [8] N. Wada, A. Inoue, H. Yano and K. Torii, Phys. Rev. B, **52**, 1167 (1995).
- [9] K. Yamashita and D. S. Hirashima, Phys. Rev. B, **79**, 014501 (2009).
- [10] K. Yamashita and D. S. Hirashima, J. Low Temp. Phys., **162**, 617 (2011).
- [11] 和田信雄, 平島大, 日本物理学会誌,**66(9)**,666,(2011年9月).
- [12] P. Levitz, G. Ehret, S. K. Shinha and J. M. Drake, J.Chem.Phys., **95**, 6151 (1991).
- [13] E. D. Adams, K. Uhlig, Y.H. Tang and G. E. Haas, Phys. Rev. Lett., **52**, 2249 (1984).
- [14] J. R. Beamish, A. Hikata, L. Tell and C. Elbaum, Phys. Rev. Lett., **50**, 425 (1983).
- [15] C. W. Kiewiet, H. E. Hall and J. D. Reppy, Phys. Rev. Lett., **35**, 1286 (1975).

- [16] G. M. Zassenhaus and J. D. Reppy, Phys. Rev. Lett., **82**, 4800 (1999).
- [17] K. Yamamoto and Y. Shirahama, Phys. Rev. Lett., **93**, 075302 (2004).
- [18] K. Yamamoto and Y. Shirahama, Phys. Rev. Lett., **100**, 195301 (2008).
- [19] K. Yamamoto and Y. Shirahama, J. Low Temp. Phys., **77**, 013601 (2008).
- [20] J. Taniguchi, Y. Aoki and M. Suzuki, Phys. Rev. B, **82**, 104509 (2010).
- [21] 三上功悦, 谷口淳子, 鈴木勝, 『1次元ナノ多孔体中の超流動 VI』 日本物理学会 2012 年年次大会、関西学院大学、2006 年 3 月.
- [22] N. D. Mermin and H. Wagner, Phys. Rev. Lett., **17**, 1133 (1966).
- [23] T. Eggel, M. A. Cazalilla and M. Oshikawa, Phys. Rev. Lett., **107**, 275302 (2011).
- [24] H. Ikegami, Y. Yamato, T. Okuno, J. Taniguchi, N. Wada, S. Inagaki and Y. Fukushima, Phys. Rev. B, **76**, 144503 (2007).
- [25] G. Ahlers, Phys. Rev. A, **8**, 530 (1973).
- [26] M. Okaji and T. Watanabe, J. Low Temp. Phys., **32**, 555 (1978).
- [27] Junko Taniguchi, Rina Fujii and Masaru Suzuki, Phys. Rev. B, **84**, 134511 (2011).
- [28] Junko Taniguchi and Masaru Suzuki, Phys. Rev. B, **84**, 054511 (2011).
- [29] S. Inagaki, A. Koiwai, N. Suzuki and Y. Fukushima, Bull. Chem. Soc. Jpn., **69**, 1449 (1996).
- [30] S. Brunauer, P.H. Emmett and E. Teller, J. Amer. Chem. Soc., **60**, 309 (1938).
- [31] I. Langmuir, J. Amer. Chem. Soc., **40**, 1361 (1918).
- [32] A.L. McClellan and H.F. Harnsberger, J. Colloid Interface Sci, **23**, 577 (1967).
- [33] 白濱 圭也, 固体物理 **30**, 532 (1995).
- [34] J. D. Reppy, Physica, **126B**, 335 (1984).

- [35] G. C. Straty and E. D. Adams, *Rev. Sci. Instrum.*, **40**, 1393 (1969).
- [36] 小林 俊一, 大塚 洋一, 『低温技術』, 東京大学出版社, (1987).
- [37] J. Wilks, *The Properties of Liquid and Solid Helium*, (Oxford University Press, 1967).
- [38] H. Ikegami, T. Okuno, T. Yamato, J. Taniguchi and N. Wada, *Phys. Rev. B*, **68**, 092501 (2003).
- [39] S. G. Sydoriak and T. R. Roberts, *Phys. Rev.*, **118**, 901 (1960).
- [40] D. F. Brewer, *J. Low Temp. Phys.*, **3**, 205 (1970).
- [41] D. J. Tulimieri, J. Yoon and M. H. W. Chan, *Phys. Rev. Lett.*, **82**, 121 (1999).
- [42] M. Paetkau and J. B. Beamish, *Phys. Rev. Lett.*, **80**, 5591 (1998).
- [43] T. R. Roberts and S. G. Sydoriak, *Phys. Fluids*, **3**, 895 (1960).
- [44] M. Barmatz, *J. Low Temp. Phys.*, **5**, 419 (1971).
- [45] F. M. Gasparini, M. O. Kimball, K. P. Mooney and M. Diaz-Avila, *Rev. Mod. Phys.*, **80**, 1009 (2008).
- [46] Y. Matsushita, R. Toda, M. Hieda, T. Matsushita and N. Wada, *J. Phys. Chem. Solids*, **66**, 1520 (2005).
- [47] C. W. Kiewiet, H. E. Hall and J. D. Reppy, *Phys. Rev. Lett.*, **35**, 1286 (1975).
- [48] D. A. Ritchie, J. Saunders and D. F. Brewer, *Phys. Rev. Lett.*, **59**, 465 (1987).
- [49] N. R. Brubaker, D. O. Edwards, R. E. Sarwinski, P. Seligmann and R. A. Sherlock, *J. Low Temp. Phys.*, **3**, 619 (1970).

関連論文の印刷公表の方法及び時期

1. “Double Torsional Oscillator Measurements for ^4He Confined in 1D Nanoporous Medium FSM16 with a 2.8-nm Channel”
Junko Taniguchi, Kenta Demura, Masaru Suzuki,
Journal of Low Temperature Physics, Vol. 171, 644-649 (June 2013).
2. “Dynamical superfluid response of ^4He confined in a nanometer-size channel”
Junko Taniguchi, Kenta Demura, Masaru Suzuki,
Physical Review B, Vol. 88, 014502 (July 2013).
3. “Dynamical Superfluid Response of ^3He - ^4He Solutions Confined in a Nanometer-Size Channel”
Kenta Demura, Junko Taniguchi, Masaru Suzuki,
Journal of the Physical Society of Japan, Vol. 84, 094604 (August 2015).

講演目録

・ 国際学会

1. Junko Taniguchi, Kenta Demura, and Masaru Suzuki,
“Double torsional oscillator measurements for ^4He confined in 1D nano-porous medium FSM16 with 2.8-nm channel”
International Conference on Quantum Fluids and Solids (QFS2012), Lancaster, United Kingdom, August 2012.
2. Kenta Demura, Junko Taniguchi, and Masaru Suzuki,
“ ^3He impurity effect on dynamical suppression of superfluidity for liquid ^4He confined in 1D nano-porous medium FSM16”
International Conference on Quantum Fluids and Solids (QFS2013), Matsue, Japan, July 2013.
3. Kenta Demura, Junko Taniguchi, and Masaru Suzuki,
“Dynamical superfluid response of ^4He confined in 1D nano-porous medium FSM16 under unsaturated vapor pressure”
27th International Conference on Low Temperature Physics (LT27), Buenos Aires, Argentina, August 2014.
4. Kenta Demura, Junko Taniguchi, and Masaru Suzuki,
“Heat capacity of liquid ^4He confined in one-dimensional nano-porous media with a 2.2-nm channel”
International Conference on Quantum Fluids and Solids (QFS2015), Buffalo, United States of America, August 2015.

・ 国内学会

1. 「1次元ナノ多孔体中超流動 ^4He の2重連成振り子による超流動の観測」,
谷口淳子, 出村健太, 鈴木勝,
日本物理学会 2012 年年次大会, 関西学院大学, 2012 年 3 月.

2. 「1次元ナノ多孔体中超流動 ^4He の2重連成振り子による超流動の観測II」,
出村健太, 谷口淳子, 鈴木勝,
日本物理学会2012年秋季大会, 横浜国立大学, 2012年9月.
3. 「1次元ナノ多孔体中液体 ^4He の超流動の動的抑制における ^3He 不純物効果の観測」,
出村健太, 谷口淳子, 鈴木勝,
日本物理学会2013年年次大会, 広島大学, 2013年3月.
4. 「1次元ナノ多孔体中超流動 ^4He の2重連成振り子による超流動の観測III」,
出村健太, 谷口淳子, 鈴木勝,
日本物理学会2013年秋季大会, 徳島大学, 2013年9月.
5. 「1次元ナノ多孔体中超流動 ^4He の2重連成振り子による超流動の観測IV」,
出村健太, 谷口淳子, 鈴木勝,
日本物理学会第69回年次大会, 東海大学, 2014年3月.
6. 「孔径2.2 nmの1次元ナノ多孔体中加圧液体 ^4He の比熱測定」,
出村健太, 谷口淳子, 鈴木勝,
日本物理学会2015年秋季大会, 関西大学, 2015年9月.
7. 「孔径2.2 nmの1次元ナノ多孔体中加圧液体 ^4He の比熱測定II」,
出村健太, 谷口淳子, 鈴木勝,
日本物理学会第71回年次大会, 東北学院大学, 2016年3月.

著者略歴

出村 健太 (でむら けんた)

1988年10月 東京都小金井市に生まれる

2007年3月 私立札幌第一高等学校 卒業

2008年4月 電気通信大学 電気通信学部
量子・物質工学科 入学

2012年3月 電気通信大学 電気通信学部
量子・物質工学科 卒業

2012年4月 電気通信大学大学院 情報理工学研究科
先進理工学専攻 博士前期課程 入学

2014年3月 電気通信大学大学院 情報理工学研究科
先進理工学専攻 博士前期課程 修了

2014年4月 電気通信大学大学院 情報理工学研究科
先進理工学専攻 博士後期課程 入学

2017年3月 電気通信大学大学院 情報理工学研究科
先進理工学専攻 博士後期課程 修了予定