

固体He-4のbc→hc構造相転移のSR X線トポグラフィーによる観察

中島哲夫 (KEK), 岩佐 泉 (東大・理)

鈴木秀次 (東北大・金研)

液体及び固体Heは各々量子液体、量子固体と言われ、古典的な考え方では説明出来ない多くの特異な振舞を示す。ここでは必要を示す状態図に従い、異常性を二、三指摘する。

図1は⁴HeのP-T相図である。先ず通常の物質と異なり三相共存する三重点がなく、絶対零度まで液体である。クラペイロン-クラジウスの関係 $dP/dT = (S_L - S_S)/(V_L - V_S)$ (m:融解, L:液体, S:固体)において、通常では $V_L > V_S, S_L$

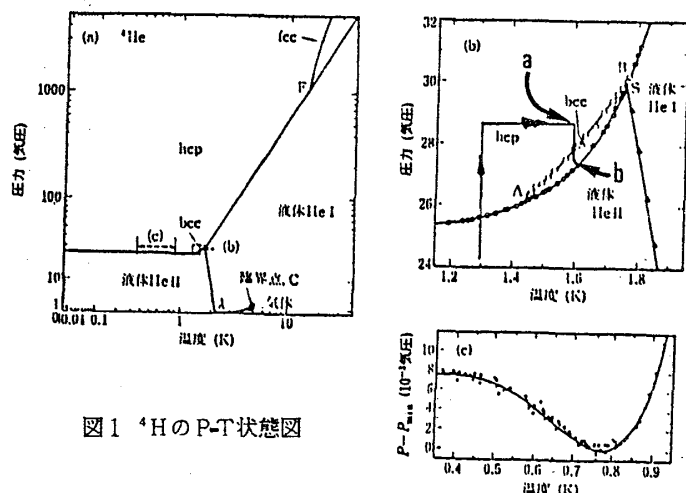


図1 ⁴HeのP-T状態図

$> S_S$ である。然るに図1では超流動転移温度 $T_\lambda \approx 2.1$ K以下では $dP/dT \approx 0$ 、即ち $S_L \approx S_S$ で殆ど液体、固体間でエントロピーの差がなく、殊に図1(b)に示す如く約0.8 K以下では⁴Heの特異な事情により $S_L > S_S$ で、実空間ではrandomな液体の方がエントロピーが低い。これは絶対零度まで液体であることを強く示唆している。

$S_L \approx S_S$ と言うことは実空間で結晶の原子は規則的配列しているが、液体では運動量空間で巨視的な数の原子が良い量子数である運動量 $hk=0$ の状態にボーズ凝縮して規則化し、超流動状態であることによる。又原子間には電子のユラギによる弱い引力(ファン・デア・ワールス力)が働いており、従って古典的に考えると、各原子はポテンシャルの極小点にコンボクトに集まり、稠密構造のfcc又はhcpしか実現しない筈である。併し図1(b)に示されたように、bccが存在する。これはやはり量子力学的にk空間において、運動エネルギーを低くする状態が実現していると考えられている。測定では図(b)示したパスように1.3 K迄冷却した後、粘性が無く、熱伝導が銀の700倍と言

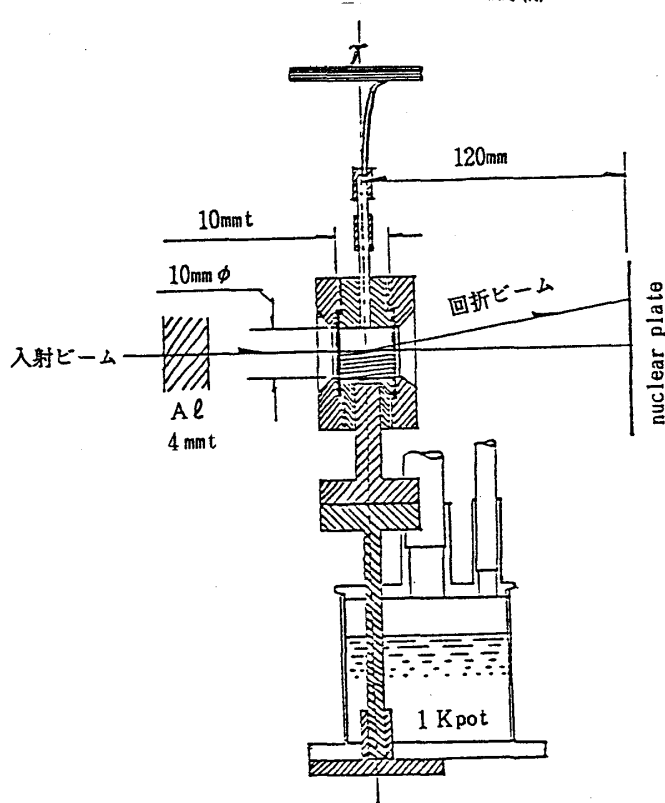


図2 クライオスタットのX線散乱部

表1

固体⁴Heの $\mu \rho t=1$ のときtの大きさ

波長	Heの μ	t
0.711 Å (MoK α)	0.18	~29 mm
1.542 Å (CuK α)	0.37	~14 mm

固体⁴Heの密度 ρ (bcc)=0.191 gcm⁻³ at T=1.6 K

μ : 質量吸収係数 cm²g⁻¹

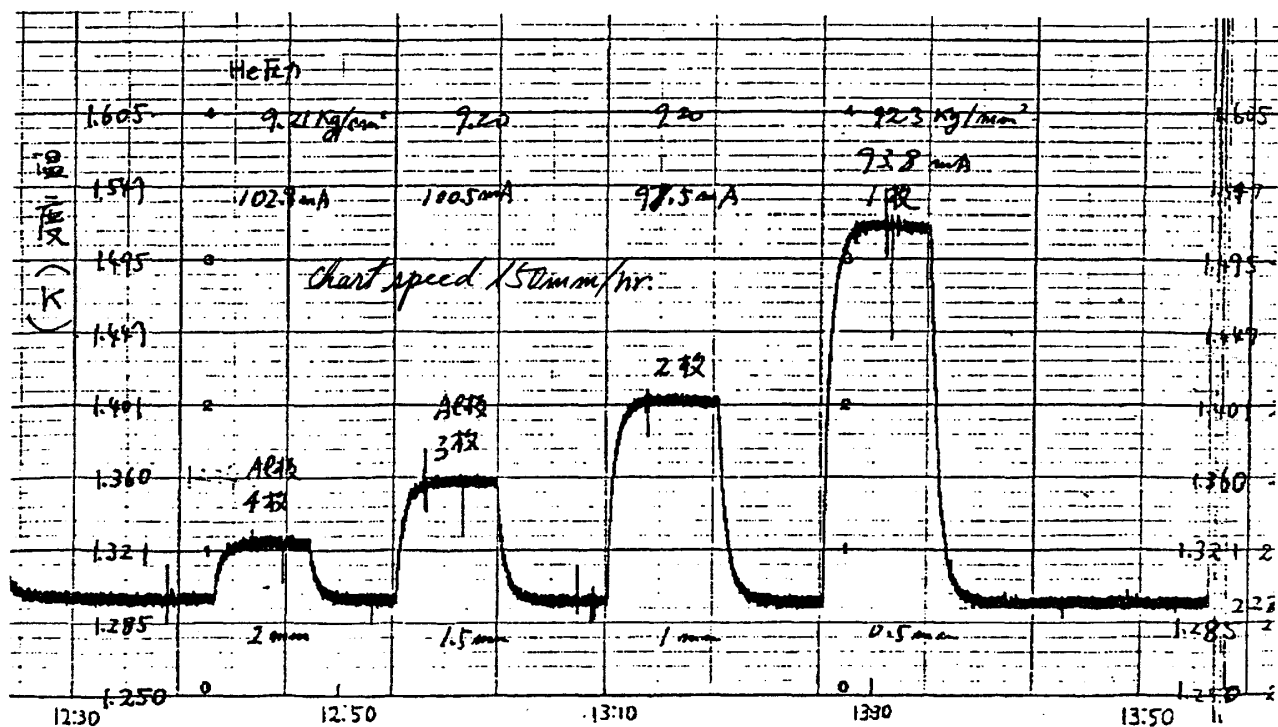


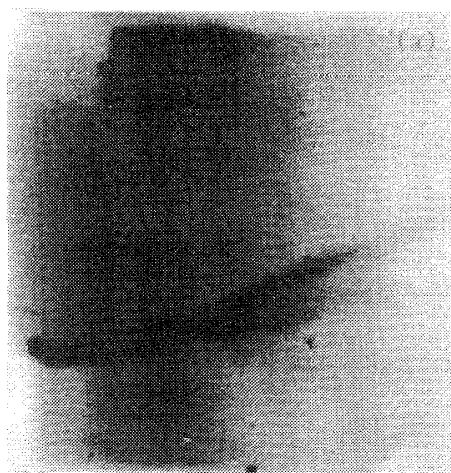
図2 放射光照射による試料の温度変化

超流動状態で加圧を行い a 点の hcp 相と b 点の bcc 相のトポグラフィーによる写真撮影とビデオによるその場撮影を行った。

クライオスタットの 1K ポットによる冷却及び加圧による単結晶成長部と光学系との関係を図 2 に示した。Be 窓の厚さは各々 1.4 mm である。試料セルの大きさは 10 mm ϕ $\times$ 10 mm t である。参考のために表 1 に $\mu \rho t = 1$ のとき厚さ t を示した。He は、 $Z=2$ で原子散乱因子が小さいこともあり、その上密度が小さいので十分な強度を得るために、普通の結晶では考えられない位厚くなる。従って、結晶の質に対する要求も厳しくなる。その上、この温度領域では比熱が大変小さいので、放射光の強力な線源による温度上昇を極力抑えるため、適当な吸収体を挿入する必要がある。此の測定では Al の 4 mm t 相当のものを挿入した。

図 2 には放射光の強力 X 線による試料の温度上昇を調べた結果を示した。フォトン・ファクトリーの偏向磁石による最高

図3 固体 ^4He のトポグラフィーの写真



- (a) hcp ($T=1.61\text{K}$, $P=28.5\text{atm}$, リング電流 128.2 mA, 露出時間 11 sec)
- (b) bcc ($T=1.61\text{K}$, $P=27.6\text{atm}$, リング電流 100.2 mA, 露出時間 11 sec)

輝度は 10^{12} フォトン/秒・ミリラジアン²・ミリアンペア・1%バンド幅である。使用したビーム・サイズは4mm×4mmで液体ヘリウムは約1.3K、圧力約9.2Kg cm⁻²の超流動状態で調べた。吸収体の0.5mmのAl α 枚数を変化させて温度変化を調べたが当然のことながら、枚数の減少に伴い温度上昇変化は大きくなる。クライオスタットの cooling power と手衡して定常状態を保ってくれるので、厳しい精度を要求しない測定には充分耐えられる。唯温度のユラギが大きく見えるのは充分検討していないが、測定器に対するノイズや電磁波による渦電流加熱等と測定される。単色光でバンド幅を $\Delta E/E \sim 10^{-4}$ のもの使用すれば問題なく使用出来ると考えられる。小さいので充分な強度を得るために、普通の結晶では考えられない位厚くなる。従って、結晶の質に対する要求も厳しくなる。その上、この温度領域では比熱が大変小さいので、放射光の強力な線源のよる温度上昇を極力抑えるため、適当な吸収体を挿入する必要がある。此の測定ではAlの4mm相当のものを挿入した。図3(a)及び3(b)には原子核乾板で撮影した⁴He-hcp(0002)斑点と(110)斑点のトポグラフィの写真を示した。ラウエ写真の全体図は示せさないがラウエ斑点は両相共各々図3(a)及び(b)に示したもの一点ずつしか得られなかった。それは11secの露出では4mmのAl板が入っているため、X線の軟部は吸収され、充分な強度が得られなかったためである。従ってこの斑点の面指数をつけることは一般に不能なのが、此の場合特別な事情がある。一次相転移で電子拡散を伴わない相変態をマルテンサイト型変態と言うが金属出は良く研究されており確立している。此の変態の基本的な特徴は原子の連帯運動の基ずく母相格子のせん断変形によるもので結晶系間の結晶方向の間に一定の格子関係(lattice relation)がある。hcp $\rightarrow$ bccでは(101)b// (0001)h、[111]b// [1210]hの関係がある。即ち今の場合(0002)h面が方位を変えずそのまま(101)bとなり、ラウエ斑の位置は変わらない。ビデオで直接観察していると、弱いけれど観察されあ他の斑点は変態と共に餅を伸ばしたようにひくずれて位置を変えてゆく。併し図3の斑点は位置を変えなかった。従って、上述の格子関係からhcpの(0002)面はbccの(101)面に変ったと断定出来る。ブラッグ角、波長、格子定数等を表三に示した。図3(a)では結晶が厚いこともあって像我重帖し、拡散しているためと面われるが明確に特定し難い。それとc軸に垂直方向のパターンだけでは三次元的な解明は出来ない。前述の lattice relation を図で表すと図4に示した如く表され、bcc相の三つの分域が可能である。図3(b)で線状のコントラストは分域境界と考えれ、それらのなす角を計測してみると大体120°のものが確認される。併し三次元的な構造について知見を得ることは無理である。今後更に晶壁面でのトポグラフィーを取ることで、前に述べたセクション・トポグラフィーにより縦、横に走査すること、二台のカメラで立体視像を得ること等々の改善のより、量子結晶から、加圧でより古典結晶に近づけ、単位胞内の構造とその集合による texture の研究を通じて⁴He結晶の一般的特性が調べられる。

表2. 固体ヘリウム-4のパラメーター

	モル体積(cm ³ mol ⁻¹)	a(Å)	c(Å)	d(Å)	λ (Å)	θ_B	T(k)	P(atm)	リング電流(mA)
hcp	20.70	3.950	5.960	2.98(0002)h	0.5395	5.194	1.61	28.5	128.2
bcc	20.90	4.110	—	2.91(110)b	0.5262	5.194	1.61	27.6	100.9

図3 hcp $\rightarrow$ bccの格子関係

