

Ⅱ 液体ヘリウムの実験のレビュー (2)

東教大理 檜 原 良 正

(8月1日受理)

Adsorbed film

Long-Meyer, Mendelssohn 等の unsaturated helium film についての pioneer 的な仕事が 1950 年代の始めにあるが, 過去約 10 年間, この方面を精力的に研究しているのは, D. F. Brewer, J. G. Dash である。又, 少し, 異なった方法 (主に第 3, 第 4 音波) を用いて, 研究をしているのが, I. Rudnick^{11), 12)} である。

「He の Adsorbed film は, 一方の側は, 固体の substrate, 他の側はヘリウムの蒸気相に接した境界面効果を研究できる系であり, 又, そのフィルムの厚さが系の特徴的な長さと同じ位という事から, size effect を研究できる」(Brewer¹⁾)

He³ の characteristic length は, Landau の quasiparticle の平均自由行程であって, 0.1K 以下でフィルムの厚さや孔のサイズと同じ位になる。He⁴ の場合は, coherence length であって, λ 点に近づくと長くなるが, λ 点より少し低くなると, 原子間距離位の大きさになる。このためにフィルムの λ 点附近での性質はバルクのと異なる。

一般に液体ヘリウムは大きな零点振動と小さな Van de Waals の引力のために, バルクの密度は小さいがフィルムの場合には, He とサブストレートとの間の相互作用が大きく零点振動の効果を打消してしまっている。Steele によって, 変型された Brunauer-Emmett-Teller 方程式^{*} を使って, Vycor ガラスに吸着された He³ と He⁴ のフィルムの状態は Vycor に一番近い第 1 層は 400 気圧近い圧力のかかった固体に対応する程, 強く圧縮されており, 第 2 層は 30 気圧位の圧力のバルク状態の液体と同じ密度を持ち, 更に上の層は, 飽和蒸気圧下の液体の密度と同じ様な密度をもっている。

比 熱

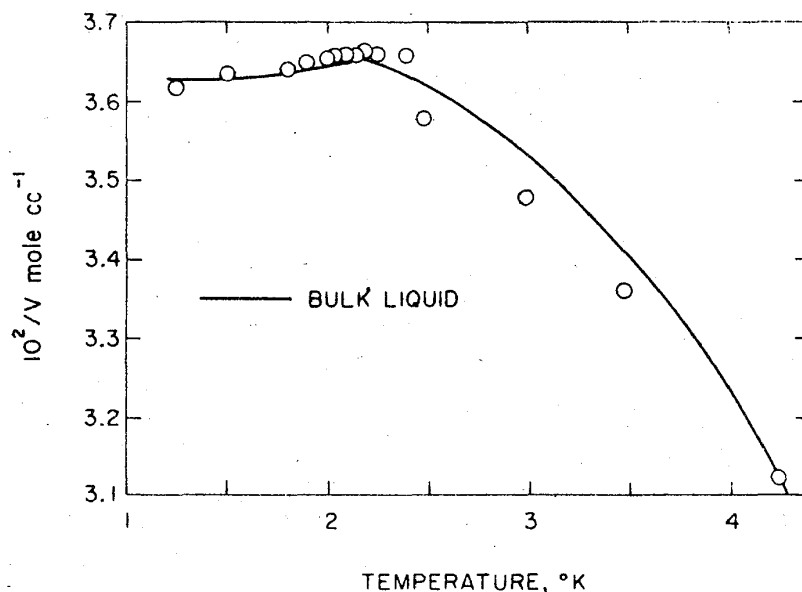
a) 単層に近いフィルムの比熱

* W. A. Steele J. Chem. Phys. 25 819 (1956)

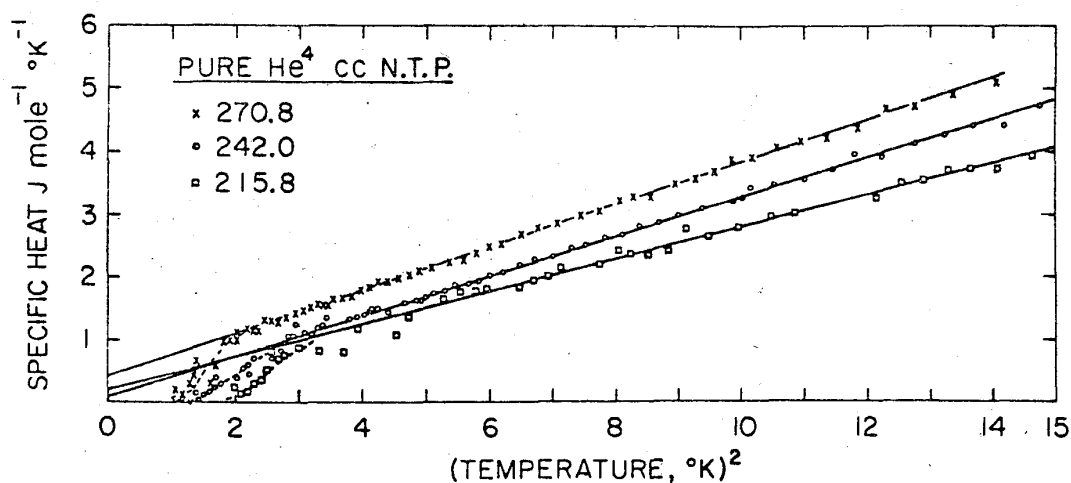
第2図は Vycor の面についてのフィルムの単層の割合が, 0.90, 1.00, 1.13 である様な He^4 フィルムの比熱である。その特徴は,

- 1) T^2 がほぼ 3 から 15 の間で T^2 に比例する。
- 2) 単層以上にフィルムがあつくなると (第2図の×印) 温度に依存しない項があらわれ, グラフが縦軸と零でない所で交叉する様になる。
- 3) 1.7K 以下では, みかけ上の比熱が急に減少する。

これは, 装置の効果である。



第1図 Density of the He^4 film about the first two statistical layers on Vycor (Brewer¹⁾による)



第2図 The specific heat of 0.90, 1.00, and 1.13 fractional monolayers of He^4 . Specific heat in J per mole per $^{\circ}\text{K}$ is plotted vs. the temperature squared in $(^{\circ}\text{K})^2$. (Brewer²⁾による)

He^3 の単層のフィルムについても同様である。

第一の問題について、2つの model が考えられる。一つは Vycor の表面あたりの原子の不秩序であるから、種々な吸着がおこる場所を作り、その場所場所は、お互に独立と考え、固体のアインシュタインモデルと同じ様に考える。しかし、実験結果から、exponential 依存性は見つからないので、原子は互に独立に振動しているのではなく、横方向ヘリウム-ヘリウム相互作用が重要な役割をしていると考えられる。そこでもっと実質的なモデル 2 次元の Debye model で

$$C_A = 240 (T/O_{D2})^2 J \text{ mole}^{-1} (\text{K})^{-1}$$

その零点エネルギー $E_{02} = (2/3)RO_{D2} = 5.54O_{D2} J \text{ mole}^{-1}$ である。それらの結果をまとめたものが第1表である。

第1表 (Brewer²⁾による)

Summary of Results for Pure ^3He and ^4He

^3He			
Fraction of monolayer coverage ^a	Sp. ht., $J \text{ mole}^{-1}(\text{K})^{-1}$	Zero-point energy E_0 , $J \text{ mole}^{-1}$	θ_{D2}
0.92	$(0.29 \pm 0.01)T^2$	160 ± 3	28.8 ± 0.5
1.03	$(0.31 \pm 0.02)T^2$ $+ (0.4 \pm 0.15)$	151 ± 3	27.3 ± 0.3
^4He			
Fraction of monolayer coverage ^a	Sp. ht., $J \text{ mole}^{-1}(\text{K})^{-1}$	Zero-point energy E_0 , $J \text{ mole}^{-1}$	θ_{D2}
0.90	$(0.26 \pm 0.02)T^2$	169 ± 6	30.5 ± 1.1
1.00	$(0.31 \pm 0.02)T^2$	154 ± 6	27.7 ± 1.0
1.13	$(0.34 \pm 0.02)T^2$ $+ (0.4 \pm 0.1)$	139 ± 6	25.0 ± 1.0

^aMonolayer coverages are taken as (see Section 2): ^3He — $225 \pm 10 \text{ cm}^3$

at NTP; ^4He — $240 \pm 10 \text{ cm}^3$ at NTP.

He^3 - He^4 混合フィルムについても $C = AT^2 + B$ がいえ、 He^3 、 He^4 と同様に、Vycor をおおうフィルムの量が増すと共に A が増加する。 A は同じ厚みに対しては、濃度によらない。 He^3 の或る濃度に対して、フィルムの量が増すと B が増加する。又濃度を増すと B が増加する。それらの結果が第 2 表である。

第 2 表 (Brewer²⁾ による)

Value of the Coefficients in the Equation $C = AT^2 + B$			
Sample	Coverage, cc NTP	A^a $\text{J mole}^{-1} \text{deg}^{-1}$	B^b $\text{J mole}^{-1} \text{deg}^{-1}$
Pure ^4He	215.8	0.267	0.15
	242.0	0.310	0.15
	270.8	0.337	0.45
4.6% ^3He	215.6	0.213	0.8
	246.6	0.293	0.6
	273.9	0.361	0.8
9.0% ^3He	212.5	0.254	0.65
	241.2	0.270	0.95
	265.8	0.320	1.1
33.0% ^3He	209.4	0.210	1.95
	240.0	0.323	1.35
	263.7	0.347	1.8
Pure ^3He	206.0	0.287	0.0
	232.4	0.314	0.45

^aUncertainty approximately $\pm 0.01 \text{ J mole}^{-1} \text{deg}^{-1}$.

^bUncertainty approximately $\pm 0.1 \text{ J mole}^{-1} \text{deg}^{-1}$.

b) 多層フィルムの比熱

第 3 図に示す様にフィルムの比熱は、バルクの比熱の様な λ 点の対数発散を示さず、まるい山となり、その頂上はフィルムがうすくなると共に低温度へ移動する。又、フィルムがうすくなると比熱極大の温度 T_p と超流動がおこる温度 T_0 が異った値をもつ様になる。(第 4 図)

即ち、 T_p と T_0 の間の温度では超流動は存在しないが、correlated phase が存在する。

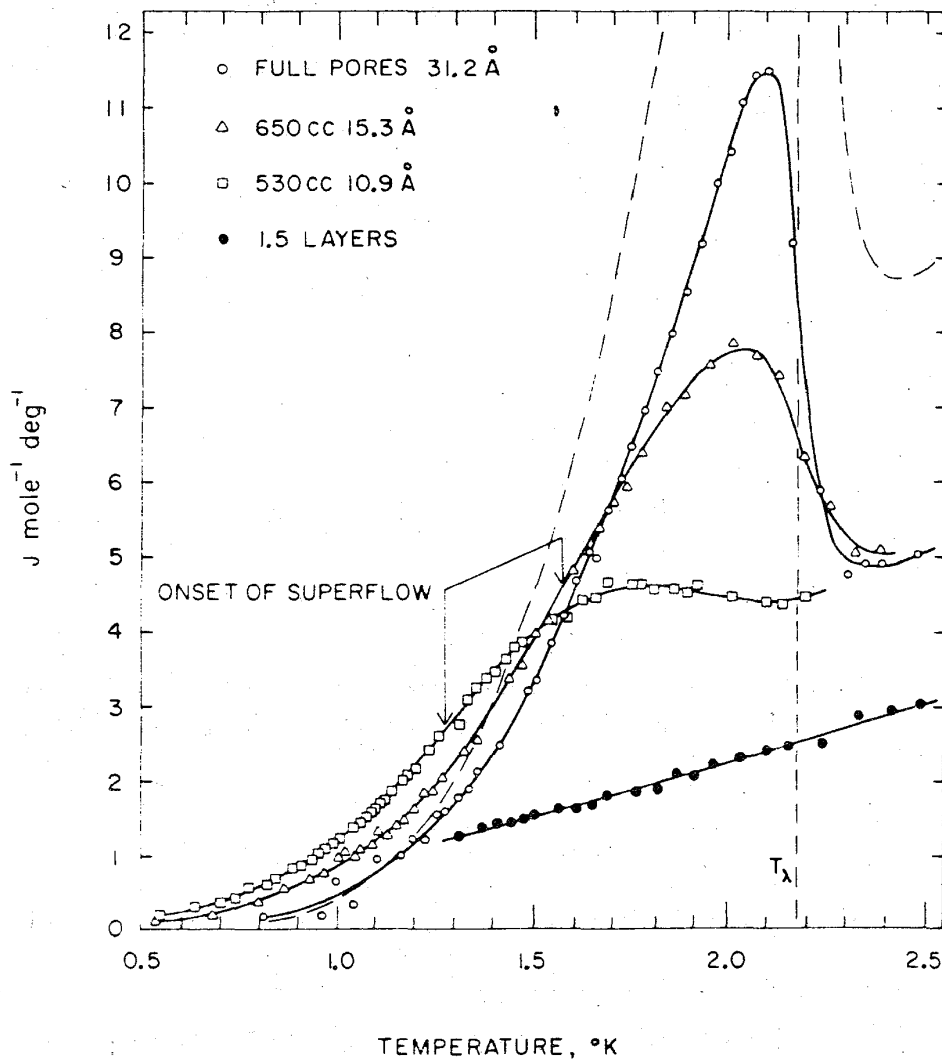
フィルムの厚さをうすくすると、表面積と体積の割合が変化して、表面効果が大きくなり、表面波(リブロンモード)がきいてくる。この事は、逆に Vycor 上のフィルムの厚みを増して、自由表面をなくしても観測される。

多層のフィルムの比熱 C_{abs} を第 1 層の比熱 C_1 第 2 層の比熱 C_2 それ以上の層の比熱の和でかけるとし、第 1 層に対しては、前節の結果を、第 2 層には、30 気圧下の

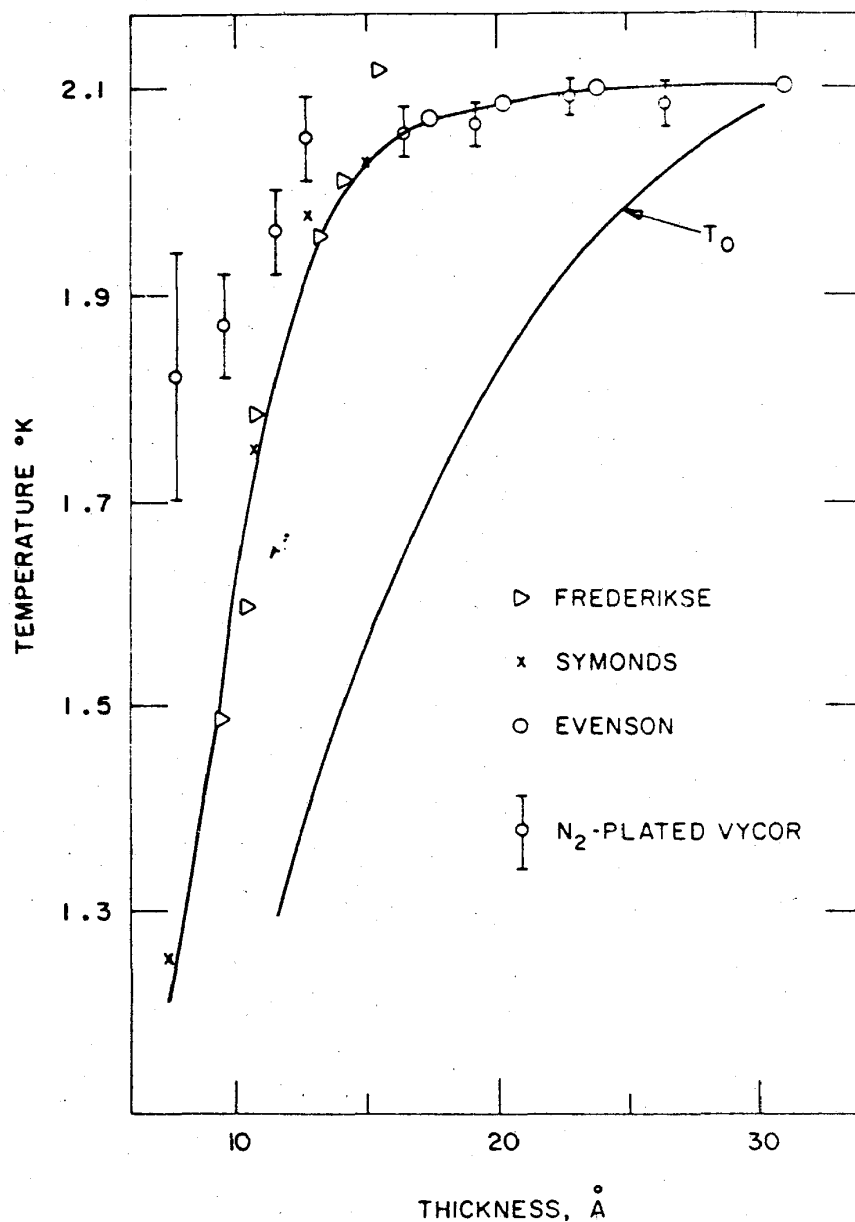
ロトンによる比熱 $AT^{\frac{3}{2}} e^{-\Delta/kT}$ と仮定して、それらを多層のフィルムの比熱の実験結果からひきさると、

$$(C_f = \sum_{n>2} C_n = C_{\text{obs}} - C_1 - C_2), \quad C_f \text{ は } T < 1.8\text{K}$$

以下では、バルクのヘリウム液体の比熱の値とよく一致する。



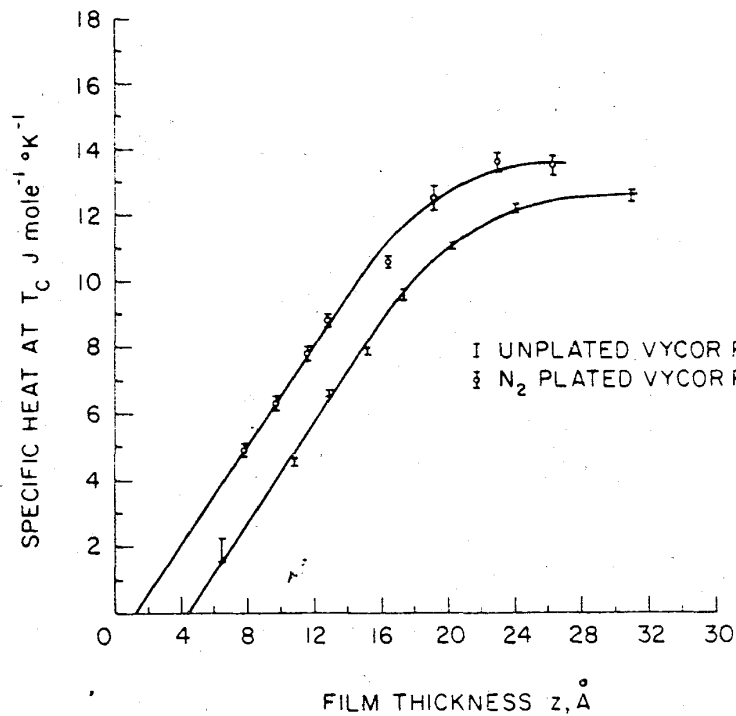
第3図 Multilayer specific heat of He^4 adsorbed on Vycor.
 (Brewer¹⁾による)



第4図 Variation of onset temperatures for superflow T_0 and specific heat maximum T_c with film thickness. (Brewer¹⁾による)

c) サブストレートの比熱への影響

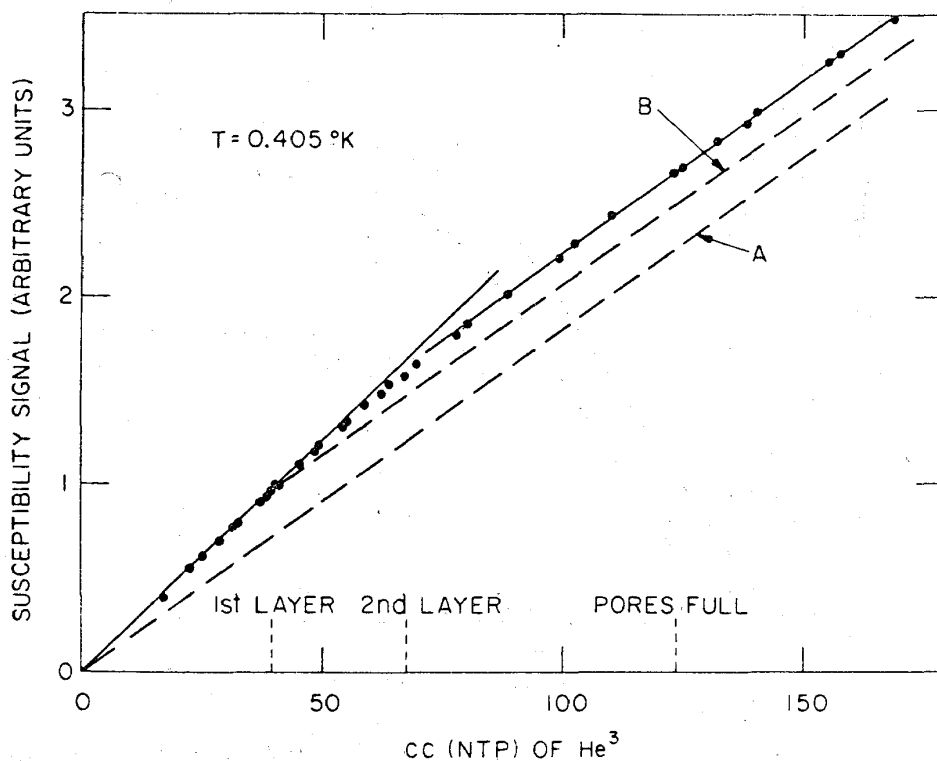
Vycor や銅その他のサブストレートの上にヘリウムフィルムが吸着した場合とサブストレートにチッソやアルゴンを吸着させ、その上にヘリウムフィルムを吸着させた場合、ヘリウムの比熱に変化があらわれる。(第5図) 又、同様な事がフィルムのフローレイトにもあらわれる。これらのサブストレートの原子の影響については、固体のバンドモデルに似た議論を Dash^{4), 6)} はしている。又、rare gas の固体上に吸着したヘリウム原子の量子状態を論じたものとして文献⁸⁾ がある。



第5図 Variation of the specific heat of the He⁴ film at the maximum in the anomaly as a function of film thickness. (Brewer¹⁾による)

He³のフィルムのNMR

- 1) T_1 (spin lattice relaxation time) はフィルムの厚さによって、あまりかわらない。(数100 m sec)
- 2) 単層の T_1 は温度依存性が、 $0.4 < T < 1.2$ Kの間でなく、Vycorの穴をHeでみたすと700 m sec から850 m sec に変化する。
- 3) 帯磁率の測定結果は、第6図の様で、第1, 2層は、その上の層と磁氣的に独立にふるまい、それより上の層は、バルク液体と同様な帯磁率をもつ結果が出ている。
密度、比熱の結果と合わせて考えるとヘリウムのフィルムはサブストレートとの相互作用の強い、第1層、第2層、そして、バルクと同じ性質を持つ、その上の層にわけて、考える事が出来る。



第6図 He^3 nuclear resonance signal plotted against quantity of sample.
(Brewer¹⁾による)

参 考 文 献

- 1) D. F. Brewer, J. of Low Temp. Physics 3 205, 1970
- 2) D. F. Brewer et al., J. of Low Temp. Phys 3 603, 1970
- 3) D. F. Brewer et al., J. of Low Temp. Phys 2 137 1970
- 4) J. G. Dach et al., J. of Low Temp Phys. 1 137, 1970
- 5) J. G. Dach et al., J. of Low Temp Phys. 3 301, 1970
- 6) G. A. Stewart et al., Phys. Rev. A2 918, 1970
- 7) J. G. Dash et al., Phys. Rev. A2 932, 1970
- 8) A. D. Novaco et al., J. of Low Temp Phys. 3 307, 1970
- 9) M. Bretz et al., Phys. Rev. Lett. 27 647, 1971
- 10) M. Bretz et al., Phys. Rev. Lett. 28 729, 1972
- 11) S. A. Scott, E. Guyon and I. Rudnick : Specific heat and superfluid density of liquid helium in porous media (Preprint) 1972
- 12) I. Rudnick, Proc. of LT12 1971

薄膜の構造(第一層, 約 400 atm 下の固体, 第二層, 約 30 atm 下の固体, 第三層以上は液体)に就いて, いくつかの質疑応答があった。

(生嶋氏) 第一層で, 面と平行方向の密度が, 何故, そのように大きくなるのか?

(永井氏) Substrate の構造が, He-film にも反映されているか?

(生嶋氏) イオンの back ward scattering を用いれば, film の構造が決められる筈。

(栗原氏) 第一, 二層で, 面と平行方向は, mobile かどうか?

(生井沢氏) 例えば, He^3 の NMR を用いれば, 分かる筈。

(大見氏) 温度によって, 吸着層の厚さも変わるのではないか?

(宗田氏) 吸着層の厚さの一様性を制御出来るか?

(檜原氏) He 原子を吸着させる際に, Substrate の表面温度, He ガスの流入量等を, 一様にしてやれば, 或程度は出来る筈。

(栗原氏) 帯磁率の温度変化をみれば, Curie law に近いのか, Pauli para に近いかで, He 原子が mobile かどうか, 或程度の区別が出来ると思うが?

(檜原氏) 第一層では, Curie law に近いと言われている。