

$d$  = 試料の大きさ、それぞれはフォノンが集団で伝播する(第2音波)には、 $l$ の範囲でN過程が何度も起こること、温度のゆらぎが第2音波として伝播する時、第2音波パルスから運動量を失うR過程が存在しないことを意味する。R過程として、U過程とboundary散乱を考える。U過程の散乱は $\tau_u^{-1} \propto e^{-a/T}$ 、N過程の散乱は $\tau_N^{-1} \propto T^m$ の割合で起き、 $T \rightarrow 0$ となると、 $\tau_u \gg \tau_N$ 、 $\lambda_u = C\tau_u \approx d$ までになる。図6の斜線部分に第2音波が存在する。 $T_B$ 以下ではフォノンは散乱されずに試料の一端に達してしまう。1-2の外側ではフォノンはU散乱を重ねながら拡散的に伝わる。第2音波が存在する範囲で、熱伝導 =

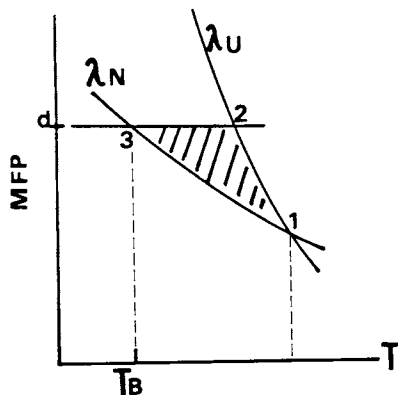


図 6

$\frac{1}{3}C_V C \lambda$ は最大値をとる。

最初、固体Heの単結晶で、熱パルスを使って第2音波が観測された。固体Heは格子振動の非調和性の異常に大きい、量子固体であるので、一般的な固体について、第2音波をとらえようとする試みが続けられ、NaF, LiF, NaIのアルカリ・ハライド結晶、半金属ビスマスで第2音波の存在が確認されている。

## 文 献

- 1) J. Wilks "The Properties of Liquid and Solid Helium" (Clarendon Press 1967) 生嶋 明, 物性 **11**, 625 (1970)
- 2) G. Terui and A. Ikushima, *Phys. Lett.* **39A**, 161 (1972) A. Ikushima and G. Terui, *J. Low Temp. Phys.* **10**, 397 (1973) D. S. Greywall and G. Ahlers, *Phys. Rev.* **A7**, 2145 (1973)
- 3) G. Terui, *J. Low Temp. Phys.* **25**, 645 (1976) G. Ahlers, "The Physics of Liquid and Solid Helium" (Wiley, New York) G. Ahlers, *Phys. Rev.* **A10**, 1670 (1974)
- 4) G. Wintering, J. Miller and T. J. Greytak, *Phys. Rev. Lett.* **30**, 427 (1973), *Phys. Lett.* **48A**, 343 (1974)
- 5) C. C. Ackerman and R. A. Guyer, *Ann. Phys.* **50**, 128 (1968) H. E. Jacson and C. T. Walker *Phys. Rev.* **B3**, 1428 (1971) V. Narayamurti and R. C. Dynes, *Phys. Rev. Lett.* **28**, 1461 (1972)

NETSUSOKUTEI 5(4) 182-185 (1978)

## 熱パルス

石黒武彦\*

## 1. はじめに

熱容量あるいは熱伝導度の測定法として熱をパルスのに加えそれに伴う温度変化を追跡する方法があるが、ここで述べる熱パルスはこれとは少し趣きを異にする。即ち、ここでは極低温において1μ秒またはそれ以下の時間での瞬時加熱により発生させられるフォノンパルスを取上げる。試料内での散乱が少ないとき熱フォノンは弾動的に伝播し、試料を通過する時間の差からフォノン・モードを区別して観測することが可能になる。Fig. 1に弾動熱パルスの観測波形の一例を示す。瞬時加熱のため

\* 電子技術総合研究所; 〒188 東京都田無市向台町

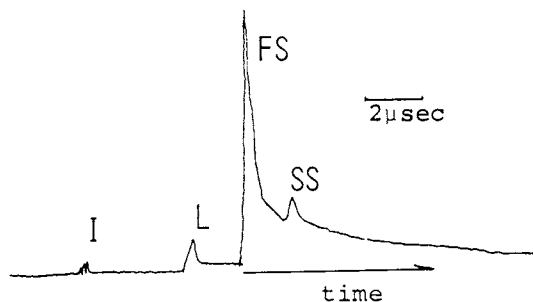


Fig. 1 Heat pulse wave form (L; longitudinal, FS; fast transverse, SS; slow transverse, I; input pulse leakage).

には試料端面に付着させた抵抗膜に電流パルスを加える方法、パルスレーザー光を吸収膜に照射する方法などが利用される。この時加熱部への注入パワーが求めれば Stefan-Boltzmann の輻射関係式をもとに輻射源の温度を知ることができ、それをもとに発生源でのフォノンの周波数分布を推定することができる。また熱パルスの検出には超伝導膜を利用したボロメータまたは超伝導トンネル接合が利用される<sup>1,2)</sup>。

Fig. 2 には  $T$  K の理想的な輻射源より放出されるフォノンエネルギー密度の周波数分布を示した。この図は、フォノン分布としてデバイ・モデルに基く周波数  $\nu$  の自乗に比例する状態密度とプランク分布およびフォノン・エネルギー  $h\nu$  の積を周波数の関数として計算することにより得られる。図より明らかなる如く、周波数は広く分布するが、ほぼ  $\nu \approx 3k_B T/h$  ( $k_B$ : ボルツマン定数,  $h$ : プランク定数) あたりに分布の山をもつ。例えば、試料を液体ヘリウム温度に保っておいて、 $T=10$  K あたりまで加熱することは容易であるが、このとき分布の山に相当する周波数はほぼ 600 GHz に達する。

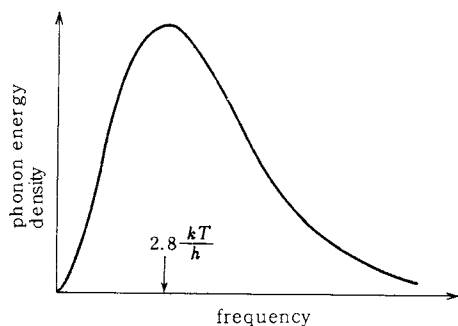


Fig. 2 Frequency spectrum of heat pulse.

さて、熱エネルギーの運び手は音波のなれの果ての熱フォノンであるということを目で追える様にみせてくれたのは Fig. 1 に示す様な熱パルスの波形であったといつて過言でなからう<sup>1)</sup>。熱エネルギーが縦波の音速、横波の音速で伝わる部分に分れて伝わっていることを示しているからである。我々が身近でみる熱の伝達でこの様な波形が感知されないのは含まれている熱フォノンの自由行路長が大変短くなり拡散的に伝わっているためであるからに他ならない。

この様な熱パルスはまず、極めて高い周波数の音波を発生させる手段として注目された。数 100 GHz の音波が難く発生させうるからである。しかし、Fig. 2 に示す様に熱パルスに含まれるフォノンは白色に近く、スペクトロスコープへの利用にあたり満足の得られるものではない。かくして、熱パルスは超高周波フォノン・スペク

トロスコープ展開の幕開けには大いに寄与したが、その後現われてきた超伝導トンネル接合を利用したフォノン・スペクトロメータなどにとって代られつつある<sup>3)</sup>。しかしながら、使い方次第あるいは他のスペクトロメータと組み合わせることによって依然としてフォノン・スペクトロスコープに利用することが可能であるし、単なるスペクトロスコープ以外の手段としても利用される場合が少なくない。ソリトン、第二音波の実験的研究はそのいい例であろう。これら熱パルスの実験手法あるいはその物性研究への適用についてはすでに幾つかの解説<sup>1~3)</sup>があるので、ここでは熱パルスを利用した最近のトピック的な研究を二、三紹介することとした。

## 2. カピッツア問題へのアプローチ

極低温において固体から液体ヘリウムへと熱を伝える場合の界面での熱抵抗は Kapitza により始めて測定されたが、その値は異常に低く、後に Khalatnikov により界面での音響整合度を考慮して求められた値よりも 2 桁余り低いことが明らかにされた。この原因はどこにあるのだろうか。この問いはカピッツア問題と通称されこれに答えるべく色々な条件の下での熱伝導度の測定がなされてきた。これに対し、1970 年頃より熱パルス法がこの問題に適用されはじまる、実験的な理解は目覚ましい進展をとげることとなった<sup>4)</sup>。

熱パルスでは速度の違いを利用して、モードを識別しつつ測定できるばかりでなく、伝播ベクトルの方向を知ることができる。更に熱パルス発生のために供給するパワーを変えることによって含まれるフォノンのスペクトルを変化させることもできる。これらの長所を生かした測定により固体と液体ヘリウム界面でのフォノンの伝達特性について次の様なことが明らかにされた。

- (1) 異常透過は 20 GHz 程度以上 (温度にしてはほぼ 1 K 以上) の高周波フォノンに限られる。
- (2) フォノンの異常透過は縦横どのモードにも等しくみられる。
- (3) 界面に到達したフォノンの一部は未知のモードに変換されており、フォノンの透過にあずかる表面近傍独特の素励起が熱エネルギーの伝達に寄与している、など。

これら実験的に明らかにされた事実は理論的考察を大いに刺激するところとなった。この状況については中山氏による最近の解説<sup>4)</sup>を参照されたい。

以上の様に熱パルスおよびそれに関連する実験手法はカピッツア問題解決のための武器として利用され研究を大いに進展させるところとなった。しかし、極く最近、フォノンパルスを使った研究によって全く新しい事実が

見出された<sup>6)</sup>。即ち、高真空中1 Kでへき開したイオン結晶と液体の界面ではカピツア問題としてとりあげられたフォノンの異常透過はみられずKhalatnikovの理論で説明できる程度の透過率になるという結果が得られたのである。これはフォノンの異常伝達は固体と液体ヘリウム界面に常にあてはまる事実ではなく固体表面における異原子の吸着が効いているということを示している。これはこれまでの実験によって得られた結論を否定するものというよりはそれを更にすすめたものに相当しているとみるべきであろう。と同時に、カピツア問題は固体吸着面の性質と深い係わりを持つものであるという新しい局面を迎えることになったといえよう。

### 3. 非晶質のフォノン状態

SiO<sub>2</sub>などのガラスの熱伝導および比熱が1 K以下の低温においてデバイ・モデルでは説明のつかない異常を示すことが報告されて以来<sup>6)</sup>この現象に深い関心が寄せられてきた。理論的説明で、現在広く受け入れられようとしているのはガラス中の原子あるいは分子のトンネルによって形成された二準位系が効いているためだとするものであるが、これを検証するための実験としてまず超音波吸収がとりあげられた<sup>7)</sup>。二準位系が超音波吸収に効いているとすると音波のパワーを増していったとき飽和が生じ吸収係数が減少することが期待される。実験結果はこれを裏付けることとなった<sup>7)</sup>。しかし、これはモデルが正しいと判断されるための必要条件の一つに過ぎない。

最近になって熱パルスを使ってなされた瞬時比熱の測定結果によれば、トンネル二準位モデルは満足なものではないことが明らかになった。即ち、トンネル二準位モデルによれば、 $C=C_1T+C_2T^3$  ( $T$ は温度、 $C_1C_2$ は係数)と書かれる比熱の温度に対する特異性の説明が可能となるが、このうち $C_1$ は時間と共に変化する関数となる筈であり、熱が導入された瞬時の比熱は時間を経た後の比熱より小さくなることが期待される。熱パルスを使うと実際にこの差があるが、否かを知ることができる。

ガラスのように構造的に乱れた系では、フォノンの平均自由行路長は短くなるために、熱パルスの伝播は拡散的になるがこの拡散度はパルスの立上りから測定でき、熱伝導度のデータと組合せると比熱が求められる。Kummer達はこのようにして求められた比熱は長時間を経た時の比熱と変わらず、トンネル二準位モデルから期待される特性とは異なる結果が得られたことを報告している<sup>8)</sup>。

### 4. “フォノン風”としての熱パルス

極低温下の高純度Geに強いレーザー光を照射すると電子・正孔より成るガスができ、これに外部より不均一歪をかけるとこれらガスは凝縮して電子・正孔液滴となる。このような液滴にフォノン・ビームを当てると丁度風に吹かれる水滴の様に電子・正孔液滴が動かされることが理論的に予言されている。

HenselとDynesは熱パルスはこうした“フォノン風”として利用できると考えた<sup>9)</sup>。液滴が移動し、またそのドリフトの様子が観測できるためには、電子系の持つ波数と同程度の波数を持つ高周波フォノンが必要となるが、これらが主成分となる熱パルスを発生させることは容易であるし、電子系と相互作用し易い縦波と、し難い横波を識別して比較観測できるのも好都合である。彼等はまず、レーザーによって液滴をつくり、熱パルスが液滴を横切る様に通過すると、電子系と相互作用する縦波のみが吸収されて減衰することを実験的に確かめた。

フォノンビームに押されてドリフトする液滴は結晶の端にとりつけられた熱パルス信号として、フォノンの信号と共に観測されることになる。液滴が形成された位置と、そこからポロメータまでドリフトするに要した時間から液滴のドリフト速度が $4 \times 10^4 \text{ cm s}^{-1}$ に達することが観測されている。

### 5. 結 言

以上、熱パルスの簡単な紹介にはじまり、最近の興味深い関連研究を紹介してきたが、これらは熱パルスに関する研究の一断面に過ぎない。Fig. 2に理想的な放射源から出ると考えられるフォノンの分布を示したが、この様な分布が実際に熱パルスの姿を反映しているかどうかについては議論が続行中であり、他のスペクトロメータとの組合せによる実験手法の開発も進行中である。従って熱パルスの手法は今後更に精密化され利用の機会も増していくと思われる。

最後に熱パルス法の興味深い一面を指摘して本稿を閉じたい。それは熱パルスは実験技術自体比較的単純であるために適用範囲が広く工夫の効く余地も多く、その特徴をうまく住かすことを心掛ければ豊かなアイデアを具現する便利な素材となり得る面を持っていることである。先述のフォノン風(phonon wind)をはじめフォノン集束効果(phonon focusing)、フォノンの窓(phonon window)、フォノン・フィルター(phonon filter)などという新語が熱パルスの研究の中から提唱されたということがこのことを端的に示していると思われるがどうか。

## 文 献

- 1) R. J. von Gutfeld, "Physical Acoustics" Vol. 5, Academic Press, New York (1968) p. 250.
- 2) 石黒, 物性 **13**, 193 (1972).
- 3) 石黒, 日本物理学会誌 **31**, 189 (1976).
- 4) 中山, 日本物理学会誌 **33**, 408 (1978).
- 5) J. Weber, W. Sandmann, W. Dietsche and H. Kinder, *Phys. Rev. Lett.* **40**, 1469 (1978).

- 6) ~~R. C. Zeller and R. O. Pohl, *Phys. Rev.* **B4**, 2029 (1971).~~
- 7) S. Hunklinger and W. Arnold, "Physical Acoustics" Vol. 12, Academic Press, New York, (1976) p. 155.
- 8) R. B. Kummer, R. C. Dynes and V. Narayana-murti, *Phys. Rev. Lett.* **40**, 1187 (1978).
- 9) J. C. Hensel and R. C. Dynes, *Phys. Rev. Lett.* **39**, 969 (1977).

## 内外情報

## ★20th Prague Microsymposium on Macromolecules. Microcalorimetry of Macromolecules.

1979年7月16日～19日, プラークで開催の予定。

次の三つのトピックスが予定されている。

- 1) Heat capacities of macromolecular substances in bulk and in solutions: characterization of phase transitions (e.g. crystallization, glass transition etc.) and structure of amorphous and crystalline phases. Structures in solutions and their changes (e.g. intra- and intermolecular ordering, conformational transitions, dissociation of molecular complexes etc.).
- 2) Heats of physical and chemical changes (sorption, swelling, solution, polymerization, polyreaction etc.).
- 3) Calorimetric methods and instrumentation: "Quasistatic", vs. dynamic measurements and slowness of changes in macromolecular systems.

予定されている招待講演者は次の通りである。

H. Baur (F.R.G.), R. L. Biltonen (U.S.A.),  
J. E. Desnoyers (Canada), F. E. Karasz (U.S.A.),  
D. Patterson (Canada), P. L. Privalov (U.S.S.R.),  
I. Wadsö (Sweden), B. Wunderlich (U.S.A.).

一般発表は展示時間90分のポスター発表と10分間の口答発表(いずれも討論時間を含む)とがある。それ以外に上記トピックスの主題に沿った討論セッション(1討論10分以内)が予定されている。

Second circularは, 1979年1月に発送される予定である。関心のある方は下記までご連絡下さい。

P. M. M. Secretariat  
c/o Institute of Macromolecular Chemistry  
16206 Prague 616  
Czechoslovakia

## ★第6回国際化学熱力学学会

(6th International Conference on Chemical Thermodynamics)

上記学会は, 当初は1979年夏にオーストラリアでの開催が予定されていたが, 都合により変更され, 1年延期して, 明後年の1980年8月26日-29日に, 東ドイツ Merseburg の Technische Hochschule "Carl Schoeemmer" で開催されることとなった。詳細は1979年3月ごろまでに発表される予定である。