

平成 23 年 5 月 11 日現在

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2009 ～ 2010

課題番号：21740218

研究課題名（和文） 量子常誘電体におけるコヒーレント第二音波の発生と制御

研究課題名（英文） Generation and control of coherent second sound in quantum paraelectrics

研究代表者

是枝 聡肇 (KOREEDA AKITOSHI)

東北大学・大学院理学研究科・助教

研究者番号：40323878

研究成果の概要（和文）：低温の量子常誘電体において存在が確認されている「温度の波動」（第二音波）をレーザー光を用いて励振するために、非平衡熱力学に基づいて光散乱スペクトルのより定量的な解析手法を考案した。また、この手法による自発光散乱スペクトルの解析結果と、高分解能誘導ブリルアン散乱の解析結果を組み合わせ、第二音波の励振に不可欠な重要な基礎的データである、フォノン間散乱における正常過程と抵抗過程の緩和時間を決定することができた。

研究成果の概要（英文）：A more systematic analyzing method for light-scattering spectrum has been developed basing on non-equilibrium thermodynamics, in order to optically generate the temperature wave (second sound) in quantum paraelectrics. Also, combining spontaneous light-scattering and high-resolution stimulated Brillouin scattering, the normal and resistive relaxation times in phonon-phonon scattering, which are essential fundamental information for generation of second sound, have been determined.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	2,600,000	780,000	3,380,000
2010年度	500,000	150,000	650,000
年度			
年度			
年度			
総計	31,000,000	930,000	4,030,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性 I

キーワード：量子常誘電体，第二音波，光散乱，誘導光散乱，ブリルアン散乱，フォノン，非平衡熱力学

1. 研究開始当初の背景

チタン酸ストロンチウム (SrTiO_3) やタンタル酸カリウム (KTaO_3) は「量子常誘電体」と呼ばれる物質群に属する。本研究の開始以前、低周波数領域の自発光散乱では SrTiO_3

において特異なピークが観測されていたが、その起源については 10 年以上もの長きに渡って論争が続いていた。しかし、より詳細な光散乱測定と新しい解析手法によって、2007 年にその起源が「温度の波動」であることが

ほぼ確実であることがわかった。そこで、この「温度の波動」（第二音波と呼ばれる）を誘導ブリルアン過程を通してレーザー光によって積極的に励振できれば、コヒーレントな第二音波を作り出せるのではないかと考えた。

2. 研究の目的

量子常誘電体において、レーザー光を用いて「温度の波動」である第二音波を励振するために必要な基礎的知見を収集し、コヒーレント第二音波の励振を試みる。

3. 研究の方法

(1) 第二音波の存在を議論するためには、誘電体における熱エネルギー担体である「フォノン」の寿命あるいは緩和時間を正確に知ることが本質的に重要である。フォノンの緩和時間は、室温程度の高温領域では、低周波数の光散乱スペクトルに現れる「準弾性成分」（熱レイリー線）の線幅から知ることができるが、低温になるとこの仮定が破綻するために、準弾性光散乱から正しいフォノン緩和時間を知ることができなくなる。これはフォノン気体における非平衡性が原因であることが分かっていたが、実際に観測される非平衡時のスペクトル線幅と正しいフォノン緩和時間の関係を新たに理論的に導くことによって、この問題を克服する。

(2) 過去に測定されている量子常誘電体における光散乱スペクトルを洗練し、より広い温度範囲、周波数範囲のデータを網羅する。さらに(1)で導かれる非平衡状態にも対応できるスペクトルの解析手法を用いて新しいデータを解析することで、正しいフォノンの緩和時間を見積もる。

(3) 自発光散乱法の改良を行い、また、より高分解能な誘導光散乱法（誘導ブリルアン散乱法）も使い、音響フォノン線の高分解能分光を行う。温度依存性と波数依存性を測定することによって、音波減衰の種類（熱力学過程/量子力学過程）や、フォノン-フォノン散乱に関わるフォノンの波数の大きさが評価できる。

(4) 第二音波の許容される条件を導いた上で、パルスレーザーを用いた衝撃誘導熱散乱実験を行う。これによって結晶中にインパルスに熱を創り出すが、もし温度の波動（第二音波）が過減衰となる場合、即ち熱が拡散する場合には熱緩和と呼ばれる指数関数の減衰が観測される。一方、もし温度の波動（第二音波）が常減衰となる場合には、信号は振動的な振る舞いになる。

4. 研究成果

(1) 非平衡熱力学を用いて、非平衡なフォノン気体における光散乱スペクトルの表式を導出することに成功した。これによって、高温から低温にかけての広い温度範囲、および約 1GHz~1000GHz 程度の広い周波数範囲に渡る光散乱スペクトルを予想できるようになった。

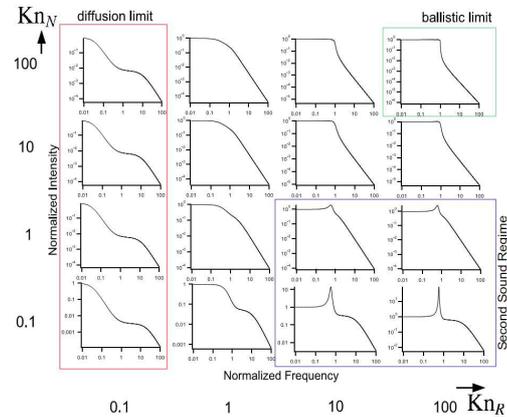


図1. 非平衡熱力学に基づいて計算したフォノン気体に対する光散乱スペクトルの概形

図1に計算によって得られた光散乱スペクトルの概形を一覧形式で示す。この図においては、横方向は右（左）に向かうほど抵抗散乱過程が希薄（頻繁）であり、縦方向は上（下）に向かうほど正常散乱過程が希薄（頻繁）であるような順に配置されている。0.1~100までの数字はフォノン平均自由行程と実験で決まる長さ尺度の比を表し、数字が大きいほど衝突が希薄であることを意味する。左の列は熱拡散レジームに対応し、右下のグループが第二音波レジーム、右上の領域は非平衡レジームである。また、グラフは全て両対数軸でプロットされている。

この一覧から分かるように、フォノン気体において抵抗過程が支配的である場合にはスペクトルは熱拡散の準弾性光散乱（熱レイリー線）を中心に持ち、その裾野により幅広い第二の準弾性散乱成分を伴う。また、正常過程のみが支配的である場合には、熱レイリー線は消失し、シフトを伴った「第二音波線」へと変貌する。これは熱の波動が抵抗過程によって過減衰状態となるために熱拡散が（見かけ上）起こっており、抵抗過程がなくなれば、正常過程フォノン（波数の小さな熱フォノン）の集団運動として常減衰の熱の波動、すなわち常減衰第二音波が存在することに対応している。さらに正常過程も抵抗過程もあまりおこらないような希薄なフォノン気体では非平衡性によってスペクトルは従来知られていない特異な形となることがわかる（図1で右上の領域）。この場合、

スペクトルは一つの成分へと融合し、その線幅は光散乱の波数の1乗に比例するようになる。熱レイリー線は光散乱の波数の2乗に比例するため、この「波数1乗特性」は非平衡性の特徴と解釈することもできる。実際に多くの結晶において、低温において熱レイリー線の線幅が波数の2乗特性から1乗特性へと変化していく様子が観測されていたが、その理由を系統的に説明することに初めて成功した。

このような知見はスペクトルの振る舞いを予測できるだけでなく、新しい表式を実際のスペクトルの解析に用いることによって、これまで得ることが不可能であったスペクトル形状（線幅・シフトなど）の決定因子に含まれるフォノンの緩和時間（正常過程および抵抗過程の緩和時間）を知ることを初めて可能にした。

(2) 従来の自発光散乱分光器は周波数シフトがゼロの位置（励起レーザー線の位置）を中心にはズームできるが、音響フォノン線のように周波数シフトを持つ線をズームすることは通常はできない設計になっている。そこで図2に示すような改良を施し、周波数シフトが大きい場合にも任意の周波数位置でスタビライズできるようにした。このシステムではあらかじめ励起光レーザーと周波数差をつけた補助光源をスタビライズ用レーザーとして別途用意するため、任意の周波数位置でスペクトルをズームできるようになった。

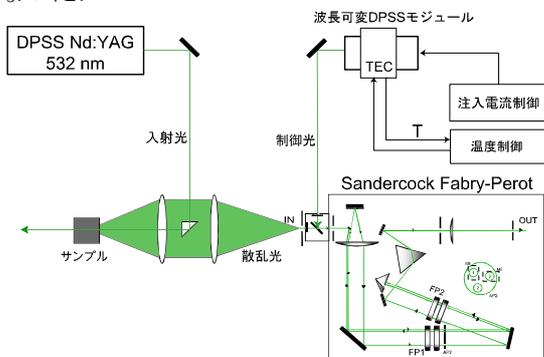


図2. 任意の周波数位置でスペクトルをズームできるように改良した自発光散乱分光システム

誘導ブリルアン散乱については従来から運用しているシステムを用いたが、光学系の配置を見直したり、信号系統の改良・見直しを進めた結果、従来よりもS/N比が格段に向上し、信号の弱い量子常誘電体における横波音響フォノン線が観測できるようになった。誘導ブリルアン散乱における使用レーザー波長は1064nm、また改良された自発ブリルアン散乱システムでは532nmのレーザーを用いるので、観測/励起される音響フォノンの

波数および周波数はちょうど2倍異なる。したがって自発・誘導ブリルアン散乱によって得られる音響フォノン線幅の温度依存性はそのまま波数（周波数）依存性の温度変化になる。実験の結果を図3に示す。

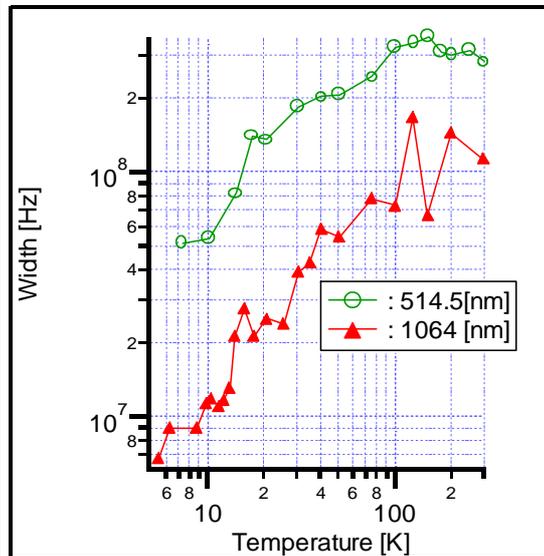


図3. タンタル酸カリウムにおけるTAフォノン線幅の温度依存性と励起波長依存性

線幅は温度降下と共に一旦増大し、150K程度で極大値を取ってから温度の1乗程度に比例して緩やかに減少している。通常の誘電体結晶では音響フォノン線幅の温度依存性は温度降下に対して単調減少であり、低温領域では温度の3乗から4乗という激しい狭窄化を示すことがよく知られている。これは低温では音波の伝搬を妨げようとする「熱フォノン」が急激に減少するためであるが、それに対して量子常誘電体であるタンタル酸カリウムでは熱フォノンがあまり減少せず、低温でも多数の「熱フォノン」が熱励起されていることを明瞭に示している。また、タンタル酸カリウムでは、極低温から室温にかけての広い温度範囲において2倍の周波数比を持つフォノンの線幅が約4倍の比を保っている、すなわち周波数の2乗に比例する線幅を持ち続けることがわかった。これは通常の誘電体結晶では高温でのみ見られる現象であり、この事実も「低温にも関わらず多数の熱フォノンが熱励起されている」という事実を明瞭に示している。

(4) 衝撃誘導熱散乱実験を用いて熱拡散の時間プロファイルの温度依存性を測定した。今回用いたシステムではレーザーパルスの時間幅が7nsと広く、また測定系の周波数帯域が約50MHzであったため、熱拡散の様子のみを観測することになる。その結果、熱拡散に寄与する抵抗過程の緩和時間の温度変化が得られ、低温では抵抗過程の緩和時間が非

常に長くなっており、抵抗過程がほとんど起きていないことがわかった。

この低温で「抵抗過程がほとんど起きていない」という事実と(3)の「熱フォノンが多数熱励起されている」ということを組み合わせると、少なくともタンタル酸カリウムにおいては「低温では正常過程がフォノン間散乱を支配している」という新事実が導かれる。そのような状況では図1に示したように、光散乱スペクトルでは熱レイリー散乱の代わりに第二音波ピークが現れるはずである。実際にタンタル酸カリウムでは約15K以下の温度領域でこのような光散乱スペクトルが観測されているため、タンタル酸カリウムでは第二音波が存在できるということをより系統的に示せたことになる。

一方、チタン酸ストロンチウムでは105Kの構造相転移によって音響フォノン線が大きく変化してしまうために、誘導ブリルアン散乱を組み合わせた音響フォノン線幅の解析は困難であるが、自発光散乱の系統的な解析から第二音波が存在するための周波数バンドが明確に定義できることを明らかにしている。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計4件)

- ① Akitoshi Koreeda, Seishiro Saikan, Hiroki Taniguchi, and Mitsuru Itoh, Power-law Quasielastic Light Scattering Observed in $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$, *Ferroelectrics*, 査読有, 印刷中
- ② Akitoshi Koreeda, Ryuta Takano, Akira Ushio, and Seishiro Saikan, Collective Phonon Excitation in KTaO_3 , *Physical Review B*, 査読有, vol.82, 2010, 125103(1-7)
- ③ 是枝聡肇、齊官清四郎, 量子常誘電体における第二音波, 固体物理, 査読有, 第45巻, 2010, pp.111-122
- ④ Akitoshi Koreeda, Ryuta Takano, and Seishiro Saikan, Light Scattering in a Phonon Gas, *Physical Review B*, 査読有, vol.80, 2009, 165104(1-25)

[学会発表] (計12件)

- ① 是枝聡肇、高野隆太、齊官清四郎、谷口博基、伊藤満、森茂生, リラクサー $\text{P}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ における低周波数領域光散乱分光 (III), 日本物理学会第66回年次大会, 新潟大学
- ② 牛尾昂、高野隆太、大野誠吾、是枝聡肇、

齊官清四郎, KTaO_3 における高分解能誘導ブリルアン散乱 (III) 日本物理学会 2010 年秋季大会, 2010/9/23~25, 大阪府立大学

- ③ 是枝聡肇、齊官清四郎、谷口博基、伊藤満, リラクサー $\text{P}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ における低周波数領域光散乱分光 (II), 日本物理学会 2010 年秋季大会, 2010/9/23~25, 大阪府立大学
- ④ Akitoshi Koreeda, Seishiro Saikan, Hiroki Taniguchi, and Mitsuru Itoh, Self Similarity of the Central Peak of PMN Observed by Light Scattering, 第8回日韓強誘電体会議, 2010/8/4~6, 姫路市イーグレ
- ⑤ Akitoshi Koreeda, Ryuta Takano, Akira Ushio, Seishiro Saikan, and Toshirou Yagi, Second Sound in SrTiO_3 and KTaO_3 , 第8回日韓強誘電体会議, 2010/8/4~6, 姫路市イーグレ
- ⑥ Akitoshi Koreeda, Ryuta Takano, Akira Ushio, and Seishiro Saikan, Thermal Wave, Thermal Diffusion, and Ballistic Heat Propagation in SrTiO_3 and KTaO_3 , 第10回ロシア/CIS/バルチック・日本強誘電体会議, 2010/6/21~23, 東京工業大学すずかけ台キャンパス
- ⑦ Akitoshi Koreeda, Ryuta Takano, Akira Ushio, and Seishiro Saikan, Collective Phonon Excitation in Quantum Paraelectrics: Second Sound, Thermal Diffusion, and Ballistic Phonons, 13th International Conference on Phonon Scattering in Condensed Matter, 2010/4/19~23, Taipei, Taiwan
- ⑧ 牛尾昂、高野隆太、大野誠吾、是枝聡肇、齊官清四郎, KTaO_3 における高分解能誘導ブリルアン散乱 II, 日本物理学会第65回年次大会, 2010/3/20~23, 岡山大学
- ⑨ 是枝聡肇、高野隆太、齊官清四郎、谷口博基、伊藤満, リラクサー $\text{P}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ における低周波数領域光散乱分光, 日本物理学会第65回年次大会, 2010/3/20~23, 岡山大学
- ⑩ 牛尾昂、高野隆太、大野誠吾、是枝聡肇、齊官清四郎, KTaO_3 における高分解能誘導ブリルアン散乱, 日本物理学会 2009 年秋季大会, 2009/9/25~28, 熊本大学
- ⑪ 是枝聡肇、高野隆太、齊官清四郎, サンダーコック型ファブリーペロー干渉計のオフセットスタビライズによる高精度ブリルアン散乱測定, 日本物理学会 2009 年秋季大会, 2009/9/25~28, 熊本大学
- ⑫ Akitoshi Koreeda, Collective Excitation of Phonons in Quantum Paraelectrics, Japan-Slovenia Symposium on

Ferroelectrics, 2009/9/8~9, Ljubljana,
Slovenia

〔図書〕（計 0 件）

〔産業財産権〕

○出願状況（計 0 件）

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

○取得状況（計 0 件）

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

<http://femto.phys.tohoku.ac.jp/~kore/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

是枝 聡肇 (KOREEDA AKITOSHI)

研究者番号：40323878

東北大学・大学院理学研究科・助教

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：