



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	超短レーザーパルスによる時間分解フォノンスペクトロスコピー
Author(s)	八木, 駿郎
Citation	電子科学研究, 3, 8-14
Issue Date	1996-01
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/24335
Type	departmental bulletin paper
File Information	3_P8-14.pdf



超短レーザーパルスによる 時間分解フォノンスペクトロスコピー

相転移物性研究分野 八木 駿 郎

ピコ秒あるいはフェムト秒の時間幅を持つレーザーパルスを用いて物質内にフォノンを励起しその実時間における振る舞いを直接観測する時間分解フォノンスペクトロスコピーは、相転移物性の研究に新しい可能性をもたらす。この方法では物質内の任意の空間位置にモードと波長を選択してフォノンを励起することができ、その時間変化をプローブすることで波数に依存する外力に対する応答関数を実時間で観測できる。応答関数はスペクトル強度に対してフーリエ変換の関係にあるので、この方法は従来の分光法において分光器の分解能の制限を受ける振動数領域を相補的に精度よく観測できる特徴がある。この方法により相転移物性の研究において実時間領域におけるダイナミクスの判定ができるばかりでなく、(1)フォノンモードの制御による相転移の制御、(2)長波長フォノンの励起、(3)フォノン選択励起などの新しい可能性が期待できる。

1. はじめに

今世紀の初頭のラマン散乱の発見以来、物質を構成する原子・分子のエネルギー状態の解明には、光散乱スペクトルを求めて解析することが伝統的に行われてきた。このスペクトルの観測とその解析により物質内の構成分子・原子あるいはそれらの集団のエネルギー構造が詳細に解明されてきた。この方法では、観測から得られるスペクトル波形 $I(q, \omega)$ と複素感受率関数 $\chi(q, \omega)$ (ただし q, ω は波数と角振動数) との関係、

$$I(q, \omega) \sim (kT/\omega) \text{Im}\chi(q, \omega) \quad (1)$$

から、いわゆる周波数ドメインにおける物質情報としての $\chi(q, \omega)$ を求めていることになる。感受率関数は物質の誘電率や弾性率などに関係した電子材料物性上最も基本的で重要な物質定数である。当研究分野でもレーザーラマン散乱装置、スペクトル直視装置および広帯域高分解能分光装置などを駆使してスペクトル強度の観測から電子材料物性の原子的機構の解明を行ってきた。

とくに当研究分野で研究対象としている相転移現象は、熱平衡の状態では見られないゆらぎの増大を本質的な機構としてもち、それに基づいて秩序変数及びそれと結合している様々な物理量に異常が生じ、新しい

物性発現の機構のヒントを豊穡に宿している舞台である。相転移の研究はこの機構の原子論的な動的機構(ダイナミクス)を完全に解明することを目的としているので、相転移機構に対するプローブとしてのフォノンの挙動を観測することは極めて重要である。しかし、フォノンの挙動の奥に隠された相転移ダイナミクスを余すところ無く明らかにするためには、そのスペクトル強度つまり周波数ドメインにおける観測だけでは十分な情報を得ることはできない。

最近のレーザー技術の発達では、ピコ秒 (10^{-12} sec) あるいはフェムト秒 (10^{-15} sec) 領域の時間幅を持つ超短光パルスの発生を容易にし、かつてはレーザーの専門家しか扱えなかったこれらの超短光パルスを用いた物性実験の舞台に登場させつつある^[1,2]。物性実験では特に微弱な信号の観測を問題にすることが多く、光源としてのレーザーには長時間の安定性が求められる。さらに、具体的な実験システムにはこのほかに物質の状態を変化させるための多種多様な機器が含まれ、光源としてのレーザーにもそれらの機器群と同様の維持管理の容易さが求められる。当然その価格も中心となる機器に比較して廉価でなければならない。最近のレーザーの性能向上はこれらの必要性も満たし、ここで述べるように、相転移物性研究の新しい手法として超短光パル

スを用いてフォノンを生成し、その挙動を実時間で検出する時間分解フォノンスペクトロスコピーを可能にした。以下では、その原理と実際に相転移物性研究分野で試みられている実験システムについての解説を述べ、続いて相転移の研究へ応用した例を紹介する^[3-6]。

2. 時間分解フォノンスペクトロスコピーの原理

この方法は以下に述べるようにフォノンの励起と、励起後のフォノンの時間発展のプロープの2つの部分から成る。

2.1 定在波としてのフォノンの励起

フォノンの励起は、ある角度で試料物質内で交差する2本の経路に沿ってレーザー光パルスを物質内に送り込み、その交差する領域（交差領域あるいは励起領域）で角振動数 ω_1 , ω_2 , 波数 k_1 , k_2 をもつ2個の光パルスを時間的にも一致させることで行われる。この交差領域の中で2個の光パルスの電場の振幅が同位相で重なり合うところは強い電場となり干渉縞を形成する。この状態を実現するためには光の振動数を持つ電場の振動の位相が2つの光パルスの間で一定であることが必要である。つまり、光の干渉の実験でよく知られているように干渉縞が生じるためには交差する2光束は互いにコヒーレントでなければならない。この干渉縞は図1に簡単な模型で示したように平行な縞模様であり、時間的には光パルスの時間幅の間だけ生じるので過渡的干渉縞である。これはまた回折格子のように光を回折するので、過渡的グレーティング (transient grating) とも呼ばれる。この干渉縞の間隔 d は図1に示されたように入射光の波長 λ と光パルスの光路の交差角度 θ で変わる。これらの間には

$$\lambda = 2d \sin(\theta/2) \quad (2)$$

の関係があり、交差角を変えることで干渉縞の空間周期 d を変えることができることがわかる。このことは交差角を変えることで特定の波数 $q = 2\pi/d$ を持つ励起状態を選択して励起できることを意味している。またこの q は $q = k_1 - k_2$ を満たしている。生成された干渉縞は、交差する2個の励起光パルスの時間幅 τ_p が充分短くて、その間における振動数 ω のフォノンの運動が無視できるとき、つまり $\tau_p \ll 2\pi/\omega$ のときには、光パルスの通過時間の間、フォノンは空間的に静止して

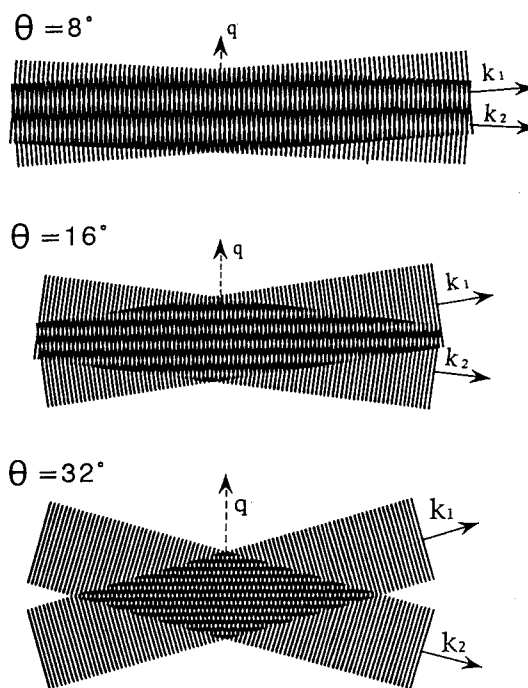


図1 光パルス (波数 k_1 , k_2) が角度 θ で交差したときに生じる過渡的干渉縞の模式図。細い平行線は光パルスの平面電磁波の波面を、太いぎざぎざの線は干渉縞を示す。上から $\theta = 8^\circ, 16^\circ, 32^\circ$ 。 q は干渉縞の間隔を波長とする波数ベクトル。

いるパターンとして励起される。2個の光パルスの干渉で互いに強めあった電場の生じた領域では、その電場が外力として働き物質中に電場と物質の相互作用を直接反映した応答として(2)式で与えられる d を波長とする励起状態が生成される。

その相互作用には、1) 電場による各原子内の電子雲のひずみと電子雲に対する核の相対変位により生じる誘電率の変化、2) フォトンの吸収過程により物質がエネルギーを吸収することによる温度上昇にともなう密度の変化に伴う誘電率の変化、の2通りを考慮することができる。前者は光弾性相互作用 (photoelastic interaction) と呼ばれ、光の電場が誘電率の変化を直接励起し、後者は過渡的グレーティングに応じて空間的に光の吸収で熱的に膨張した領域 (熱グレーティング) が誘電率の変化を生成する。どちらの場合も誘電率の空間変化を定在波として生じる。このことは光パルスの時間幅がフォノンの振動数の逆数に比べて充分短いときグレーティングのパターンに応じて波数 q を

もつ“外力” $F(q)$ が,

$$F(q, t) = A\delta(t) [\delta(q-q') + \delta(q+q')] \quad (3)$$

と与えられることを意味する。ここで A は光パルスの強度に依存する定数で、 $\delta(t)$ は時間 t に関するデルタ関数である。この波数 q' は前述のように干渉縞の間隔 d により $q' = 2\pi/d$ である。 $F(q, t)$ によって生じる誘電率の変化 $\epsilon(q, t)$ は、線形応答理論により応答関数 $G(q, t)$ を用いて、

$$\epsilon(q, t) = \int_{-\infty}^t dt' G(q, t-t') F(q, t') \quad (4)$$

と与えられる。従って励起領域に光パルスが入射してから t 秒後の応答としての誘電率は

$$\begin{aligned} \epsilon(q, t) &= A[G(q, t)\delta(q-q') + G(q, t)\delta(q+q')] \quad (5) \end{aligned}$$

となる。(5)式は光パルスが交差領域に入射した直後に励起された定在波の、それに続く時間発展としての $\epsilon(q, t)$ を示しており、光パルスの通過した後は残された励起状態は物質内の相互作用にもとづく力を受けて、平衡状態へ向かってそのダイナミクスを反映して $\pm q$ の向きに互いに逆の2方向に進行する運動を始める。このダイナミクスとして物質内のあるフォノンモード $Q_i(q, t)$ を考えると $\epsilon(q, t)$ は、

$$\epsilon(q, t) = \alpha Q_i(q, t) \quad (6)$$

と表される。ここで α は $Q_i(q, t)$ と $\epsilon(q, t)$ の結合定数であり、モード Q_i が光学型フォノンの場合にラマンテンソル成分に、音響型フォノンの場合には光弾性結合などに対応する。また(6)式では単一のモードが $\epsilon(q, t)$ に関係している場合を表しているが複数のモードが結合している場合もある。(6)式の左辺は $Q_i(q, t)$ を与え、外力 $F(q, t)$ が $\epsilon(q, t)$ を通じてモード $Q_i(q, t)$ を誘起することになり、 $Q_i(q, t)$ は(3)式より、

$$\begin{aligned} Q_i(q, t) &= A_i[G_i(q, t)\delta(q-q') \\ &\quad + G_i(q, t)\delta(q+q')] \quad (7) \end{aligned}$$

となる。 $F_i(q, t)$ でフォノンモード $Q_i(q, t)$ が励起されて、その時間発展は応答関数 $G_i(q, t)$ で与えられる。以下では $Q_i(q, t)$ として音響フォノンが励起される場合を考える。 $G_i(q, t)$ の時間依存性は運動方程式によって与えられ、光パルスが1)の光弾性結合を通じて $Q_i(q, t)$ を励起する場合には、

$$G_i(q, t) = \gamma_e \exp[-(\Gamma_i/2)t] \sin(\omega_i t) \quad (8)$$

となり、減衰振動子のもとなる。ここで γ_e 、 Γ_i および ω_i はそれぞれ光と弾性歪みの間の結合定数、生成

された i 番目のフォノンモードの減衰定数、固有角振動数である。一方2)の熱吸収による過程では、 $\epsilon(q, t)$ を生ずる熱的に励起された領域が熱伝導により緩和する過程と、熱膨張による弾性歪みの生成、伝播の過程があるので、

$$\begin{aligned} G_i(q, t) &= -\gamma_a \{ \exp[-(\Gamma_r/2)t] \\ &\quad - \exp[-(\Gamma_i/2)t] \cos(\omega_i t) \} \quad (9) \end{aligned}$$

と与えられる。(9)式で第1項は熱伝導、第2項は弾性波の伝播による効果を表す。 γ_a と Γ_r はそれぞれ光吸収による弾性歪み生成の効果を表す定数と熱伝導度に比例する熱格子の緩和定数である。

2.2 励起されたフォノンのプローブ過程

励起後のフォノンの運動状態を観測するためには、励起光パルスの通過後からある時間間隔だけ遅れた時刻にプローブ光を励起領域に照射し、その回折光を検出する。これにより励起されたフォノンの応答関数 $G_i(q, t)$ を求めることが出来る。回折光発生の基本過程は通常の光散乱と同様にプローブ光の電場で形成される振動双極子モーメント P_i からの輻射であるので、励起光パルスから τ だけ遅れて入射する波数 k_3 、振動数 ω_3 をもつプローブ光の電場、

$$E(t-\tau) \exp\{i[k_3 \cdot r - \omega_3(t-\tau)]\} + c.c.$$

によって振動誘起分極、

$$\begin{aligned} P_i(r, t, q, \tau) &= \epsilon(r, t) \exp\{i[k \cdot r - \omega_3 t + \phi]\} \times \\ &\quad E(t-\tau) + c.c. \quad (10) \end{aligned}$$

が生じる。ここで $k = k_1 - k_2 + k_3 = q + k_3$ で ϕ はプローブパルスの到達時間が遅れることによる位相のずれである。励起された状態のうちラマン活性のものがプローブ光と相互作用して k の方向で回折光を生じる。その強度 $I_d(\tau)$ は、

$$\begin{aligned} I_d(\tau) &\sim \int dt \left\langle \left| \int dr P_i(r, t, \tau) \exp[ik \cdot r] \right|^2 \right\rangle \\ &\sim |\epsilon(q, \tau)|^2 \\ &\sim |G_i(q, \tau)|^2 \quad (11) \end{aligned}$$

となり、回折光強度を遅延時間 τ の関数として回折角で測定することにより、 τ を t と書き換えて応答関数 $G_i(q, t)$ の2乗が観測される。

3. 実験システム

この方法の実験上の重要なポイントは、コヒーレントな2個の光パルスを作り出すことと、それを試料内

で時間的, 空間的に一致させることである。我々の実験システムを図2に示す。まずコヒーレントな2個の光パルスの生成は, Qスイッチ付きCWモードロックYAG($\lambda = 1,064\text{ nm}$)あるいはYLF($\lambda = 1,054\text{ nm}$)レーザーからの光パルスをビームスリッターなどで2経路に等強度比で分けることで得られる。我々の場合には必要な時間幅によってYLFレーザーとYAGレーザーを使い分けている。YLFレーザーのQスイッチ繰り返し周波数は400 Hz, ピークパワー1.8 MW, パルス幅60 psであり, YAGレーザーの場合には繰り返し100 Hz, ピークパワー160 kW, パルス幅300 psである。これらのレーザーからQスイッチ発振されたパルス列のうちから1個のパルスをポッケルセルをパルスセクターとして用いて切り出して, フォノン励起用のパルスとして用いる。

プローブ光の励起領域への入射のタイミングは光学遅延装置を通過させることで調節する。図2の場合には1.5 mの光学遅延装置に2往復させて最大20 nsの

遅延時間を得ている。cw光をプローブとして用いることもあり, 回折光強度の時間依存性の検出は, パルスプローブの場合にはボックスカー積分器を, cwプローブの場合にはデジタルオシロスコープを用いた。

4. 実験結果

4.1 回折光強度の時間依存性

最初にフォノン励起過程に光弾性効果によるものと熱吸収効果によるものの2通りのプロセスがあることをみるために, (8)式と(9)式で述べた γ_e と γ_a の値に対照的な差を持つ2つの液体物質, 四塩化炭素とエチルアルコールについてのフォノン誘起スペクトロスコピーの実験例を示す。図3(a)は四塩化炭素の測定例であるが, 音響フォノンの励起が観測された。その結果は, ほぼ(8)式の結果の $G_i(q, t)$ を(11)式に代入したものを表している。従って四塩化炭素の場合にはフォノン生成はほとんど光弾性結合を通じてなされていることがわかる。(11)式で表されているように回折光の強度は

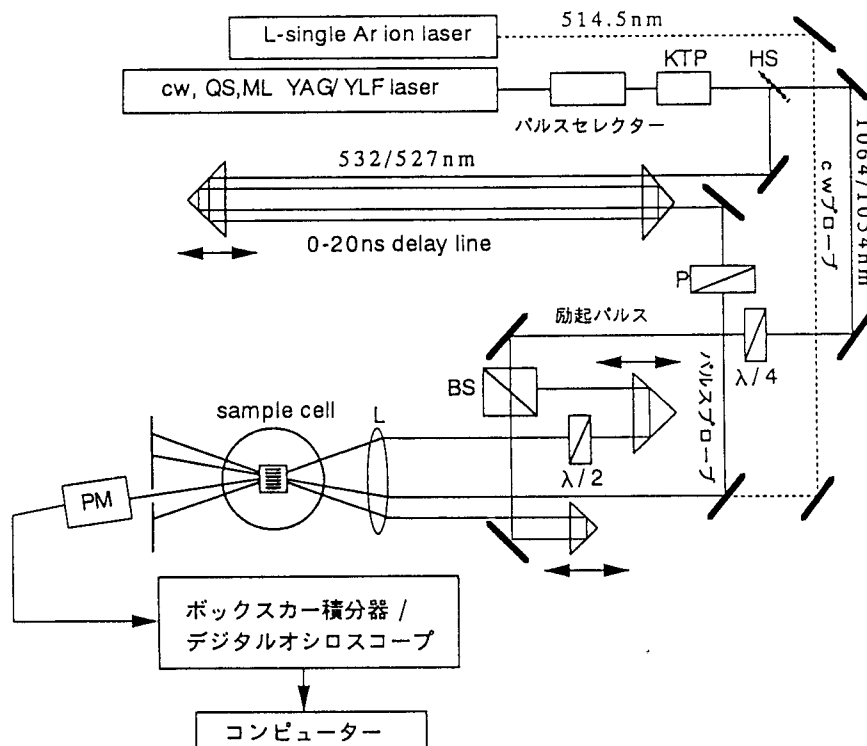


図2 時間分解フォノンスペクトロスコピー実験システム。
HS: ハーモニックセパレータ, KTP; SHG素子としてのKTiOPO₄結晶, BS; ビームスプリッター, PM; 光電子増倍管。プローブ光として縦シングルモードアルゴンイオンレーザーからのcw光を用いるときには点線の経路による。sample cellには温度, 圧力等の計測制御装置が付く。

$G_i(q, t)$ の振幅の2乗に比例するので観測された結果も ω_i (今の場合には音響モードの角振動数)の2倍の振動数を示している。ただし減衰定数 Γ_i については実験結果は見かけ上大きい。これは励起領域から進行波動の“逃げ出す”効果であり、後述する。

図3(b)はエチルアルコールを試料とした結果である。この結果は(9)式でほぼ説明できる。(9)式の第1項は2つの光パルスの干渉縞に伴って熱吸収によって出来た高温部分が形成する干渉縞(熱グレーティング)が熱伝導によって消失する過程(熱緩和過程)を表し、第2項は熱吸収によって温度が上昇して膨張したことで生じた定在波としての弾性歪みが減衰しながら進行していく様子を表すが、図3(b)の結果も一致する。こ

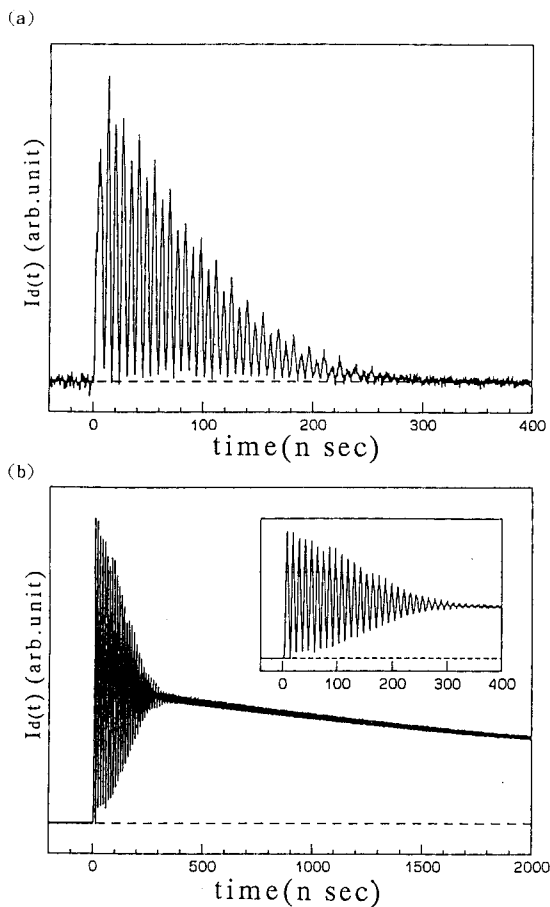


図3 (a)光弾性結合による回折光の時間依存性。試料は四塩化炭素。点線のバックグラウンドからの小さなずれは、熱吸収過程も存在していることを示している。(b)熱吸収による回折光。試料はエチルアルコール。挿入図は400 nsecまでの範囲を拡大したもの。

の場合、熱緩和過程の時定数は $4 \mu\text{sec}$ 、熱により生成された弾性波としての音響モードの振動数は約80 MHzであった。エチルアルコールの熱吸収が大きい理由としては、O-H基の内部振動の3倍音のエネルギーがここで用いたYAGレーザーの基本波長を用いた励起光パルスのエネルギーに近いと思われる。実際に他の水素結合を含む試料のいくつかを用いた結果も同様である。しかし図3(a)に示された減衰定数と同様に図3(b)のものも見かけ上大きく現れている。それはここで観測している音響モードは波長が長く励起領域における干渉縞の数は多くないので、プローブしている励起領域から時間の経過により音響モードが“逃げ出して”しまい、見かけ上減衰を大きく観測してしまう効果が含まれているからである。図4(a)にその様子をシミュレートしたものを示す。その効果を確認するために、広い面積を持つ励起領域を円柱レンズを用いて生成して、 $I_d(t)$ を観測した結果を図4(b)に示す。試料はエチルアルコールで励起光パルスの交差角などの条件は図3(b)と同一である。両者を比較すると観測されている振動のピークの数の方が多く、真の振動波形に近づいている。

4.3 相転移物性研究への応用

図5(a)は当研究分野で観測された強誘電体TGS (triglycine sulfate) の $I_d(t)$ のシグナルで、世界最初の研究例である。今までの液体試料に比べて結合係数が小さくシグナル強度は約1,000分の1であった。このシグナルの温度依存性を強誘電性相転移温度 T_c 近傍において観測した結果が図5(b)である。 T_c の低温側の相は自発分極を持つ強誘電相であるので、この相転移の秩序変数 (order parameter) は電気分極であり、相転移機構としては電気分極のゆらぎのダイナミクスが問題になる。このときに音響型フォノンモードは結晶の対称性が示すように高温相では電気分極ゆらぎと結合せず、低温相である強誘電相で圧電結合を通じて双1次結合をする。したがってこの音響フォノンモードを励起してその時間変化を観測すると、フォノンをプローブとして相転移における電気分極ゆらぎのダイナミクスの検出ができる。図5(b)では弾性定数 c_{22} に関する音響モードの音速の異常が T_c の直下で生じていることを示しており、この結果は分極のゆらぎが単一の緩和時間を持つ緩和型であることを示してい

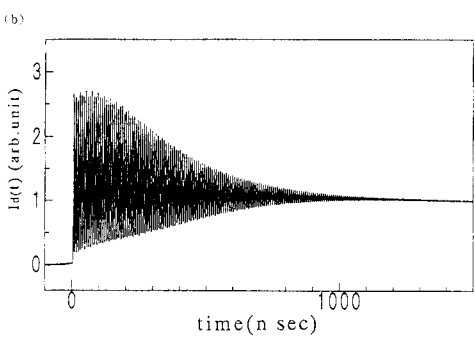
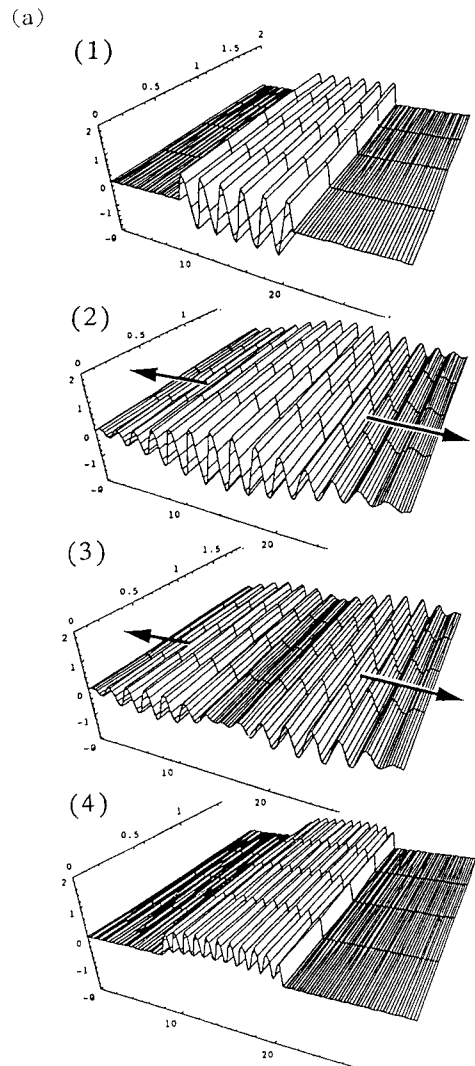


図4 (a)過渡的グレーティングの時間変化の模式図。(1)励起直後、(2)時間の経過とともに励起領域から±qの方向にフォノンの波動が進行し始める。(3)励起フォノンは励起領域からほとんど逃げ出して、(4)そのあとには熱吸収によるグレーティングが残る。従ってプローブ領域を固定していると見かけ上フォノンの減衰が大きく測定される。(b)円柱状レンズを用いて励起領域を広げた効果の実験例。試料はエチルアルコール^[7]。

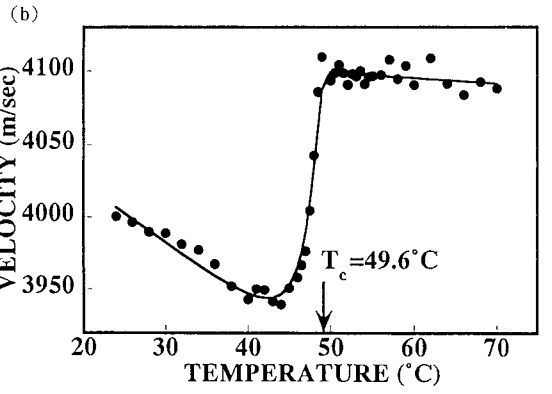
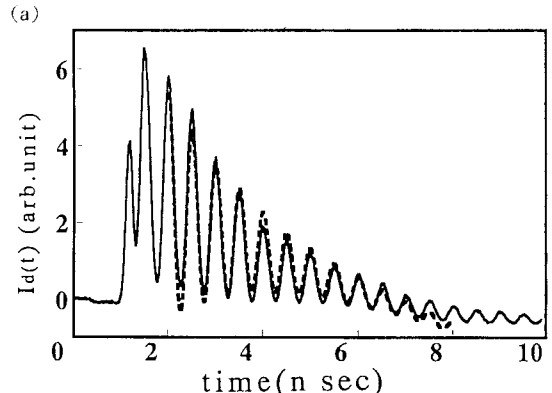


図5 強誘電体 TGS (triglycine sulfate) の相転移に伴う弾性異常。(a)単結晶中に励起された c_{22} 音響モードの回折光強度(実線)。点線は本文中の(9)式において第1項を無視し、 $\omega_i = 12.572 \times 10^9$ rad/sec, $\Gamma_i = 0.510 \times 10^9$ /secを用いて得られた。(b)回折光強度の温度依存性から求められた c_{22} 音響モードの T_c 近傍の異常。

る。測定振動数範囲はブリルアン散乱と超音波の間をカバーするものであり、解析の結果分極緩和時間 τ_{p1} の温度依存性が $(T_c - T)^{-1}$ に比例することが明らかになった。

5. 今後の研究の新しい可能性

ここまで述べたようにこの方法は、超短光パルスを用いて任意のフォノンを生成してその実時間運動を観測できる特徴から様々な新しい相転移物性研究の可能性を秘めている。特に実時間ドメインにおける観測によって、相転移ダイナミクスの運動方程式の直接検証による解明は計り知れないメリットである。さらに今後期待できる可能性は、

1) 相転移の制御

共鳴・非共鳴の条件を実現することで相転移に関与

するモードを enhance したり, 逆に強制的に damp させることで物質内の特定の集団分子運動としての“モード”の運動を制御することが可能である。このモードが音響型格子振動モードであれば, ここで述べた方法で, 結晶内の特定の弾性歪の成分を制御できることになる。強弾性相転移の場合には高対称性相の弾性歪成分の一つが不安定化し低対称性相へ相転移をするが, このときこの弾性歪成分に対応する音響型格子振動フォノンがソフトモードとなる。このフォノンに対して共鳴・非共鳴の条件を適用すると相転移の制御が可能となる。各種の物理量の揺らぎが増大し非線形性が顕著に現れる相転移においてその発現を制御できることは物性研究に従来にない新しい可能性をもたらすことが期待できる^[3,4]。

2) 長波長を持つフォノンの観測

従来のラマン散乱あるいはブリルアン散乱などの光散乱法では, 分光器を用いてスペクトルを検出していた。そのため ω の小さい領域のスペクトル成分は分光器の分解能の制限により正確な観測はできない。構造相転移の研究においては, 長波長つまり 0 にきわめて近い q のフォノンスペクトルは重要である。ここで述べた方法はこの領域にコヒーレントな励起状態を生成し, その時間的振舞いを検出するのであるから低振動数をもつ状態に検出には時間的に低速の検出法でむしろ正確な検出が容易でありコヒーレントフォノンであるので S/N 比も良く, この意味でこの方法は従来の光散乱法を補うものである。この特性を利用して従来の方法では結論できなかった $q \sim 0$ におけるダイナミクスに光を当てることを期待できる。またこの方法と従来の光散乱法との関連は(1)式の感受率 $\chi(q, \omega)$ は応答関数 $G_i(q, t)$ と,

$$\chi(q, \omega) = \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp(i\omega t) G_i(q, t) \quad (17)$$

の関係があるので相補的であることは当然である。

3) フォノン選択励起

ある範囲では波数ベクトルの大きさと向きを任意に選択でき, かつ励起光パルスの偏りとプローブ光の偏りを組み合わせることで励起するフォノンのモードを人為的に選択できる。さらにこの選択したモードを前述の共鳴法を用いて選択的に励起し振幅を増大できる。これにより励起されたフォノンが, どのような速さでどういう結合を経て緩和していくのか, あるいはフォノンがどのような素励起に結合しているのかなど, 固体中の励起状態間のダイナミクスを任意に解明できる。 q の大きさの範囲はブリルアンゾーンの Γ 点の近傍ではあるが方向と大きさとかつ領域も選択でき, 他の方法には見られない特徴である。

ここまでピコ秒領域の時間幅を持つ光パルスレーザーを用いたので主に音響フォノンの励起について述べたが, フェムト秒のものを用いると光学フォノンの励起も可能であるが検出系の高速化も必要となる。しかしこの方法は励起状態さえ出来てしまうと後のプローブ過程はむしろ通常の光散乱分光法よりも単純で, かなり強い回折光を直接検出するので多くの場合 S/N の良いシグナルが得られる。現在ではまだパルスレーザーは相当大がかりな装置の部類に属するが, 今後さらにレーザー技術が向上してより簡便で高性能なものが出現すると, その廉価化と併せて, ここで述べた時間分解フォノンスペクトロスコーピーは従来のラマン, ブリルアン散乱に匹敵あるいはそれ以上の有効なかつ新しい可能性を期待できる相転移物性研究の有力手段になると思われる。以上

【参考文献】

- [1] K. A. Nelson, R. J. D. Miller and M. D. Fayer: J. Appl. Phys. **53**, 1144 (1982).
- [2] M. M. Robinson et al.: Chem. Phys. Lett. **112**, 491 (1984); IEEE Quant. Electron. QE-22, 1453 (1986).
- [3] 木下修一, 八木駿郎: 固体物理, **28**, 273 (1993).
- [4] S. Kinoshita, W. Tsurumaki, Y. Shimada and T. Yagi: J. Opt. Soc. Am. **B10**, 1017 (1993).
- [5] S. Kinoshita, Y. Shimada, W. Tsurumaki, M. Yamaguchi and T. Yagi: Rev. Sci. Instrum. **64**, 3384 (1993).
- [6] H. Furuta, Y. Tsujimi, Y. Shimada and T. Yagi: J. Phys. Soc. Jpn. **64**, 4113 (1995).
- [7] S. Yoshioka: private communication.