



# HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	フェムト秒モードロックレーザーシステムによる強誘電性モードのコヒーレント励起
Author(s)	吉岡, 伸也
Citation	電子科学研究, 5, 60-61
Issue Date	1998-01
Doc URL	<a href="https://hdl.handle.net/2115/24410">https://hdl.handle.net/2115/24410</a>
Type	departmental bulletin paper
File Information	5_P60-61.pdf



# フェムト秒モードロックレーザーシステムによる 強誘電性モードのコヒーレント励起

相転移物性研究分野 吉岡 伸也

フェムト秒モードロックレーザーシステムを用いたパルス誘導ラマン散乱実験 (ISRS) を行い、強誘電体 KDP ( $\text{KH}_2\text{PO}_4$ ) の強誘電性モードを励起し、実時間で観測した。大波数ベクトル ( $k \approx 2500 \text{ cm}^{-1}$ ) の実験では、時間分解能の範囲で緩和型の運動が観測された。このことは秩序・無秩序型の相転移機構を示唆している。緩和時間の温度依存性はこれまでの実験結果と良い一致を示した。他方、小波数 ( $k \approx 700 \text{ cm}^{-1}$ ) の実験においては、振動型の運動が観測されたが、このことはフォトンのとの結合による結果であると解釈される。

## 1 序論

KDPは代表的な強誘電体で、その相転移機構に関して数多くの研究が行われてきた。中でもラマン散乱実験は相転移機構を反映するものとして、繰り返し実験が行われてきた。1968年、KaminovとDamenが初めて $B_2$ モード(強誘電性モード)のラマンスペクトルの温度依存性を報告した<sup>[1]</sup>。それは $150 \text{ cm}^{-1}$ に渡る幅の広いセントラルピークで、彼らはそれを過減衰振動子型の感受率を用いて数値解析し、振動子の固有振動数が相転移点に向かってソフト化することを示した(変位型)。さらに1973年Percyは高圧ラマン散乱実験を行い、0.93 GPaにおいてはスペクトル上にピークが現れることを発見し<sup>[2]</sup>、変位型モデルの証拠として広く受け入れられた。しかし、80年代に入り精密なラマンスペクトルの実験からセントラルピーク( $150 \text{ cm}^{-1}$ )は二つの成分からなり、中心付近( $< 20 \text{ cm}^{-1}$ )のみが分極揺らぎを反映し臨界緩和するという、秩序・無秩序型を支持する立場が現れた<sup>[3]</sup>。このように永年の間、スペクトルの解釈に決着が付かない大きな理由は、過減衰振動子(変位型)と緩和型(秩序・無秩序型)の与えるスペクトルが非常に似ているため、両者を区別できないことにある。しかしこの二つのモデルの実時間応答は全く異なる振る舞いを示すため、実時間上では容易に区別されることが期待される。すなわち緩和型は時間原点で鋭く立ち上がるのに対して、過減衰振

動子の実時間応答は原点以降にゆっくりとした立ち上がりが見られる。近年のフェムト秒パルスレーザーの出現は、物質の高速応答を直接実時間で観測することを可能とした。今回、パルス幅 130 fsec のフェムト秒モードロックレーザーシステムを用いて ISRS 実験を行い、KDP の強誘電性モードの実時間応答を直接観測した。

## 2 実験結果

ISRS 実験法の大きな特徴は、励起されるモードの波数ベクトル  $k$  を励起光の交差角度  $\theta$  で調節できることである。波数ベクトルの大きさは、

$$k = 2\pi \sin(\theta/2) / \lambda_E \quad (1)$$

で与えられる。ここで  $\lambda_E$  は励起光のレーザー波長である。まず始めに、 $\theta = 2.66^\circ$  の場合の実験結果を図 1 に示す。この交差角度は、波数ベクトルの大きさ  $k \approx 2500 \text{ cm}^{-1}$  に相当する。実験結果は 130 fsec の時間分解能の範囲で緩和型の応答を示し、秩序・無秩序型の相転移機構を示唆している。また観測された緩和モードの緩和時間は相転移温度に近づくにつれて、発散していくことが対数プロットの傾きの変化としてはっきりと観測された。数値解析によって求められた緩和時間の値はこれまでに報告されたラマン散乱実験、誘電測定の結果と非常に良く一致した。<sup>[4]</sup>

強誘電性モードは分極性のモードであるから、その横波揺らぎはフォトンと結合することが期待される。実際、分極性の横波光学フォノンとフォトンは結合し、ポラリトンを形成することが知られている。この結合は分極緩和モードに対しても同様に期待され、その結果フォトンの振動数だけでなく緩和時間も波数依存することが予想される。このことを確かめるために、より小さな波数ベクトルの実験を行った。これはフォトンの振動数をより小さくして、緩和時間の逆数とを等しくなるあたりで結合が強くなると期待されるからである。 $\theta = 0.57^\circ$  の場合 ( $k \approx 700 \text{ cm}^{-1}$ ) の実験結果を図2に示す。実験の結果、振動型の強誘電性ソフトモードが観測された。

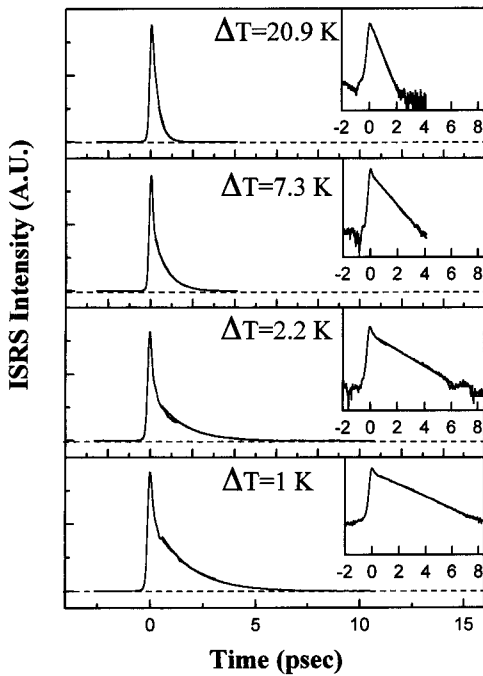


図1 KDPの強誘電性モードの実時間振舞。交差角度は  $\theta = 2.66^\circ$ 。  $\Delta T = T - T_c$ 。

この振動は緩和モードがフォトンとの結合によって振動している（フォトンブランチに相当）と考えられ、その振動数は静的誘電率の発散に伴ってソフト化していると解釈できる。今回の実験では緩和モードのブランチは観測されなかった。数値計算によれば、緩和モードの緩和時間は波数が小さい領域では速くなることが予想され、この実験の時間分解能以下になってしまう。そのために今回の実験では観測されなかったと考えられる。

### 3 まとめ

フェムト秒モードロックレーザーシステムを用いてISRSを行い、KDPの強誘電性モードを励起して実時間で観測した。実験は二つの波数ベクトルの大きさで行われ、それらの結果は秩序・無秩序型の相転移機構で解釈できる。

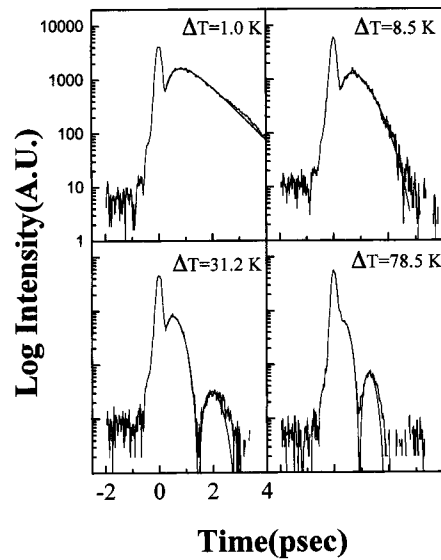


図2 低交差角度、 $\theta = 0.57^\circ$ でのKDPの強誘電性モードの実時間振舞。  $\Delta T = T - T_c$ 。

#### [参考文献]

- [1] I. P. Kaminov and T. C. Damen : Phys. Rev. Lett. **20** 1105 (1968).
- [2] P.S.Peercy : Phys. Rev. Lett. **31** 379 (1973).
- [3] 富永靖徳、徳永正晴：固体物理 **18** 724 (1983).
- [4] S. Yoshioka, Y. Tsujimi and T.Yagi: J. Korean. Phys. Soc. in press.