

学 位 論 文 題 名

Dynamics of the order-disorder phase transition studied
by impulsive stimulated Brillouin scattering

(パルス誘導ブリルアン散乱による秩序・無秩序型相転移のダイナミクスの研究)

学位論文内容の要旨

1. Introduction

秩序・無秩序型相転移のメカニズムを解明する際に、巨視的な値である秩序変数を構成するミクロな構成要素の運動（配向）のダイナミクスを解明することは必要である。この運動は、ポテンシャル障壁 ΔE でへだてられた2つの極小ポテンシャル位置間の運動として解釈されるが、この ΔE を見積もることは、この運動のダイナミクスを解明する上で極めて重要である。そして、この ΔE は、孤立系にある1ヶのdipoleの緩和時間 τ_0 の測定によって見積もられる。故に τ_0 の値を決定することは、秩序・無秩序型相転移のメカニズムを解明する上で本質的な重要性を持つ。そして、これまで様々な実験が報告されてきたが、例えば、典型的な強誘電体であるTGSにおいて、その τ_0 の報告されている値には大きなばらつきがある。

本研究では、有極性分子であるグリシンの配向に伴う強誘電性相転移をするTGS及び、無極性分子である NH_4^+ の配向に伴う相転移をする NH_4Cl について、秩序変数と結合している音響モードをパルス誘導ブリルアン散乱(ISBS)を用いて精度良く測定することによって、配向緩和時間の温度係数から τ_0 を測定することを目的とする。

2. Construction of ISBS system

ISBSは、2本の超短光パルスを時間・空間的に物質内部で交差、一致させる。その結果、物質内部に干渉縞として非常に強い光電場が瞬間的な外力として加えることができ、その応答として、物質内部にコヒーレントなフォノンを励起する方法である。そして、励起したフォノンを探光のブラッグ回折を用いて測定し、それによりフォノンの動的振る舞いを実時間領域で測定できる。本研究では、ISBSシステムの構築をフォノンを励起するための超短光パルスとしてcw QS ML Nd:YLF laserの波長1053nmの発振線を用い、探光としてAr+レーザー(波長 514.5nm)及びYLFレーザーのSHG波(波長 527nm)を用いて行った。その結果、以下で述べるコヒーレントフォノンの検出に成功した。

3. Application to the order-disorder phase transition

TGSについては、0.5GHz領域にある c_{33} 準縦波音響モードを励起し測定を行った。そして、そのモードの音速の温度依存性を測定し、緩和時間の温度依存性は $(2.0 \pm 0.4) \times 10^{-10} (T_c - T)^{-1}$ (sec)と求められた。さらに測定周波数を変え、2.0GHz領域にある音響モードを励起し、測定を行った。その結果、 $(1.6 \pm 0.4) \times 10^{-10} (T_c - T)^{-1}$ (sec)と求められた。

NH_4Cl については、950MHz, 750MHz, 400MHzの異なる3つの周波数領域で c_{11} 縦波音響モードを励起し、相転移点(242K)近傍で観測した。その結果、この3つの異なる周波数領域で音速の分散を観測した。そして秩序変数の配向緩和時間の温度依存性は $(6.0 \pm 0.4) \times 10^{-9} (T_c - T)^{-1}$ (sec)と測定された。

学位論文審査の要旨

主査	教授	八木 駿 郎
副査	教授	徳 永 正 晴
副査	助教授	辻 見 裕 史
副査	講師	野 寄 龍 介

学位論文題名

Dynamics of the order-disorder phase transition studied by impulsive stimulated Brillouin scattering

(パルス誘導ブリルアン散乱による秩序・無秩序型相転移のダイナミクスの研究)

近年、単色性の優れた光源として普及したレーザーを用いたラマン散乱、ブリルアン散乱等の分光学的方法による相転移現象の動的機構の解明に関する研究が盛んに行われている。しかし、その多くは物質中で熱的に励起されたフォノン、ポラリトン等の素励起のスペクトルの観測から、相転移機構のダイナミクスを論じることを目的としており、素励起そのものを必要に応じて励起してプローブとして用いる能動的な研究は未開拓の分野で、今後の発展が大いに期待されている状況にある。

本論文はこのような状況にある相転移研究の分野で、最近きわめて急速な進歩を見せているピコ秒の時間幅を持つ超短パルスレーザー技術を応用し、パルス誘導ブリルアン散乱システムを本邦で初めて構築することに成功して、任意の伝播方向と波長を持つコヒーレントフォノンを励起し、相転移のオーダーパラメータとの結合を通して相転移機構のダイナミクスを直接解明したものである。この新しいパルス誘導ブリルアン散乱法では2個のコヒーレントなピコ秒幅の光パルスを試料内の任意の位置に時間・空間的に一致交差させることにより、その交差角から励起フォノンの波長を、また光パルスのフーリエ幅から励起フォノンの振動数を、それぞれ選択して励起することができる。したがって、この方法によると任意の波長と振動数を持つコヒーレントフォノンを励起できることになる。これまで伝統的に用いられてきたラマンあるいはブリルアン散乱などの分光学的方法では、入射レーザー光の振動数の変化から、物質内で熱的に励起された揺らぎのうちのある特定の波長をもつものを選択し、さらに分光器でそのエネルギーを分解することでスペクトルとして観測し、振動数を決めていたことになるのに比べると、この論文での方法の優れた点

はコヒーレントな、つまり位相のそろった励起状態としてのフォノンを観測するのでそのS/N比がきわめて優れていることである。さらにまた励起したフォノンの運動を遅延時間を持ったプローブパルスを入射することで検出するので、物質中の進行に伴うフォノンの速度あるいは減衰のような基本的物理量を実時間で直接観測できるという点である。

本研究ではまず300ピコ秒の時間幅をもつ光パルスを発生するYAGレーザーおよび60ピコ秒の時間幅の光パルスを発生するYLFレーザーを用いてパルス誘導ブリルアン散乱システムを構築し、その性能改良を進めて相転移の研究に適用した。研究対象とした相転移は、一軸性強誘電体の代表物質である硫酸グリシン(TGS)とその同族化合物セレン酸グリシン(TGSe)における秩序・無秩序型-常誘電性・強誘電性相転移である。これらの強誘電体は相転移点以上の常誘電相では対称中心を持ち非圧電性であるが、相転移により強誘電相になると対称性の低下により対称中心が失われ圧電性が生じる。そのため音響フォノンは常誘電相では分極揺らぎと双一次の結合をしないが、転移点以下で双一次の結合をしその結果、分極揺らぎのダイナミクスを反映した振る舞いを示すようになる。本研究では分極軸(b軸)に直角方向に伝わる縦波音響フォノンを励起し、その相転移における振る舞いを観測した。測定された音響フォノンの振動数は従来の超音波法とブリルアン散乱法によって報告されている振動数範囲の空隙を埋めるものであった。そして双一次結合機構に基づく解析の結果、分極揺らぎの緩和時間が求められ、従来の方法による間接的な決定結果に対して絶対値が意味をもつ正しい緩和時間を初めて与えることに成功した。さらに本研究では無極性一秩序・無秩序型相転移をする塩化アンモニウム結晶の相転移を取り上げ、その相転移についても同様に音響フォノンと結合する分子配向の揺らぎの緩和時間を測定した。その結果、超音波実験で従来報告されてきた緩和時間は、本研究で直接的に実時間フォノンの振る舞いを観測することで求めた正しい緩和時間に比較して、約1桁ほど小さいことが明らかになった。

これらの結果を要するに、著者は相転移のダイナミクスを規定する基本量としての緩和時間を、新しい実験方法を構築しそれを駆使することで従来の研究結果に修正を迫る新しい知見を得たものであり、代表的強誘電体及び誘電体物質における秩序・無秩序型相転移のダイナミクスの研究に対してきわめて貢献するところが大きいものがある。

よって著者は、北海道大学博士(理学)の学位を授与される資格あるものと認める。