

学位論文題名

Phonon-Polariton Excitation  
by Impulsive Stimulated Raman Scattering  
and Its Application for the Study of THz Dynamics

(パルス誘導ラマン散乱によるフォノン・ポラリトン励起と  
THz ダイナミクスへの応用)

学位論文内容の要旨

1. Introduction

物質中における極性フォノンは、その振動数と等しい電磁波動と結合状態を作る。フォノンと結合する光の振動数はフォノンの振動数と等しいので、結合する光は遠赤外領域の光に相当する。双極子輻射として知られているように、振動する極性フォノン自身も同じ振動数の電磁波動を放出しているため、このフォノンと電磁波動が結合した状態では、物質波である極性フォノンと電磁波である遠赤外波動とが一体となっている。この状態はフォノン・ポラリトンと呼ばれ(以下ポラリトンと略記)、その分散関係を調べることで、ソフトモードとなりうる横波格子振動の振動数を求めることが出来るので、長い研究の歴史が知られている。さらに近年、遠赤外領域の電磁波を物質中で制御する新しい方法を提供するものとみなされ、いわゆるTHz領域の電磁波の研究として精力的な取り組みがなされている。

ポラリトンの観測方法として、従来は小散乱角を用いた前方ラマン散乱により非常な困難のもとに行われてきたが、近年のパルスレーザー技術の発展にともなって、パルス誘導ラマン散乱(Impulsive Stimulated Raman Scattering, ISRS)が開発され、実時間領域で精度よくTHz領域におけるポラリトンの動的振る舞いを観測できるようになった。本研究では、このISRSの方法をさらに改良して、光学位相マスクを用いたヘテロダイン検波方式とISRSを組み合わせ、ヘテロダインISRS(HD-ISRS)を構築してポラリトンの研究に応用した。これにより、ポラリトンを人工的に励起し、その伝播を実時間領域で高精度に観測できる新しい実験方法が確立された。この方法を用いて、代表的な非線形結晶として知られている強誘電体 $\text{LiNbO}_3$ (LNOと略す)に関して最近報告されている5THz以下での数個の共鳴点の存在[1]を検証した。さらに、アイソトープ誘起強誘電体である $\text{SrTi}_{18}\text{O}_3$ (STO18と略す)の強誘電相[2]におけるソフト極性フォノン・ポラリトンを励起して、相転移にともなうその温度依存性を観測することに成功した。これらの結果は、いずれも従来のRaman散乱法での困難を補うHD-ISRSの特徴が発揮されたことによるものである。

2. Experimental

実験装置は、 $\text{Ar}^+$ 励起Ti:Sapphire発振器(Tsunami, Spectra Physics)による中心波長800nm、時間幅50fsec、繰り返し周波数80MHzの光パルスを、Xe励起再生増幅器(Spitfire, Spectra Physics)により時間幅80fsec、繰り返し周波数1kHz、強度 $400 \mu\text{J}/\text{pulse}$ に増幅した。そのパルス

を光学位相マスクに垂直入射し、0次の透過光を干渉により消去し、最大強度±1次の干渉光を取り出して同位相異経路の2つのパルスに分割した。それらのパルスをフーリエ結像型光学系を用いて試料中に入射し、試料内にて時空間的に合致させることで過渡的干渉縞を生成した。その干渉縞の間隔が励起されるポラリトンの波長を与え、その振幅の時間変化は入射したプローブ光の回折光強度を測定することによって観測される。

本実験システムでは回折光と一致する方向に参照光を入射し、回折光と参照光の間での干渉を利用して、その強度をヘテロダイン検波法で観測し、信号光の増幅をはかった。それにより、従来のISRSでは強度の小さかった信号光を、図1に示すように極めて強度の大きな信号として観測できるようになり、測定精度が格段に向上した。

### 3. Results and Discussions

HD-ISRS実験システムを用いて室温におけるLNOのA<sub>1</sub>ポラリトンを励起し、その実時間応答を観測した。その結果、共鳴点が報告されていたいづれの波数においても単一の振動数が観測され、分散関係における5THz以下の領域には共鳴点が存在しないことが明らかとなった。この結果は、共鳴点がないとするRaman散乱[3]の結果を支持するものである。一方、5.8 THz付近に共鳴点を持つ強誘電体KNbO<sub>3</sub>(KNOと略す)のポラリトンを観測したところ、同一波数において2つの異なる振動数のフォノンが存在することによる「うなり」が実時間応答として観測された。この結果より、共鳴点を有する分散関係を正しく得ることができた。したがって本研究では共鳴点が存在する場合にはそれを明確に検出できることが示され、LNOに関する我々の結論が確認された。つまり、もしLNOで共鳴点が存在するならば、本方法で明確に検出できることになり、ポラリトン観測におけるHD-ISRSの優位性が示された。さらに、このシステムによりSTO18の強誘電相でソフトモードが形成するポラリトンを励起し、STO18のポラリトンを初めて観測することに成功した。その温度依存性と波数依存性を調べて、分散関係の温度依存性から静的誘電率の温度依存性とソフトモード振動数の温度依存性を同時に求めることができた。これにより従来の報告では確認が得られていなかった強誘電性のソフトモードの存在を結論することができた。

### 4. Conclusion

ISRSにヘテロダイン検波方式を導入した新しいHD-ISRS実験システムを構築し、強誘電体LNO、KNOおよびSTO18のポラリトンの観測に応用した。この方法によりフォノン・ポラリトン振動を実時間領域で詳細に観測したところ、優れたS/N比で振動数と波数を求めることができた。LNOの観測結果から、5 THz以下のポラリトン分散関係に最近報告された共鳴点が存在しないことを結論した。また、STO18の強誘電相においてソフトフォノン・ポラリトンを初めて観測することに成功し、その分散関係の温度変化から静的誘電率を導出し、強誘電性ソフトモードの存在を結論した。

このように、HD-ISRSによりフォノン・ポラリトンに関する幾つかの問題を解明できたことで、

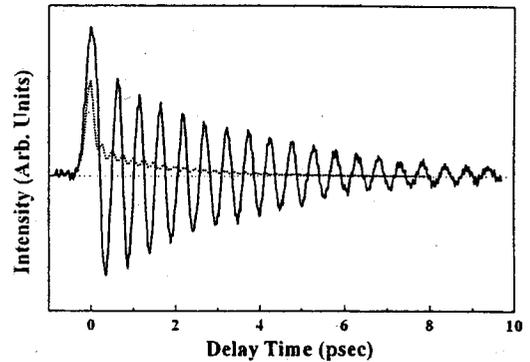


図1:LNOによるHD-ISRS(実線)と従来のISRS(点線)との信号光強度の比較。

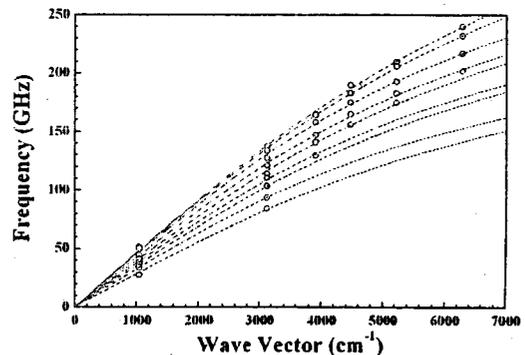


図2:STO18の分散関係の温度変化。○が実験結果、実線がフィッティング曲線。

HD-ISRSのTHzダイナミクス研究における有用性が示された。

**References:** [1] H. J. Bakker, *et al.*, Phys. Rev. B. **50**, 914 (1994). [2] M. Itoh, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **82**, 3540 (1999). [3] S. Kojima, *et al.*, J. Korean. Phys. Soc. **32**, S552 (1998).

# 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 教授 中 原 純 一 郎  
副査 助教授 辻 見 裕 史

学 位 論 文 題 名

## Phonon-Polariton Excitation by Impulsive Stimulated Raman Scattering and Its Application for the Study of THz Dynamics

(パルス誘導ラマン散乱によるフォノン・ポラリトン励起と  
THz ダイナミクスへの応用)

近年、遠赤外光の物性研究や高密度通信への応用が注目を引き、遠赤外光の光源から物質内の伝播の制御にいたる幅広い領域において研究が行われている。しかしながら、遠赤外光の振動数はテラヘルツ (THz) の振動数領域にあり、その発生も困難である上に物質内伝播の観測はさらに困難なもので、いわゆる THz ダイナミクスとして未開拓の研究分野として今後の発展が期待される状況にある。

本論文は、このような現況にある THz ダイナミクスの研究について、極めて新しい手法としてフェムト秒レーザーパルスを用いた方法を導入し、誘電体物質中にフォノン・ポラリトンを誘起してその伝播を実時間領域で観測することで極めて大きな進展をもたらした。

物質中における極性フォノンは、その振動数と等しい電磁波動と結合状態を作る。フォノンと結合する光は遠赤外領域の光に相当する。振動する極性フォノン自身も同じ振動数の電磁波動を放出するので、このフォノンと電磁波動が結合した状態では、物質波である極性フォノンと電磁波である遠赤外波動とが一体となっている。このフォノン・ポラリトンの分散関係を調べることで、横波極性格子振動の振動数を求めることが出来、さらに遠赤外領域の電磁波を物質中で制御することができる。

ポラリトンの観測方法として、従来は小散乱角を用いた前方ラマン散乱により非常な困難のもとに行われてきたが、本研究ではフェムト秒レーザーパルスと光学位相マスクを組み合わせた新しいヘテロダインISRS (HD-ISRS)法を構築してポラリトンの研究に応用した。この方法ではAr<sup>+</sup>励起Ti:Sapphire発振器(Tsunami, Spectra Physics)による中心波長800nm、時間幅50fsec、繰り返し周波数80MHzの光パルスを、Xe励起再生増幅器(Spitfire, Spectra Physics)により時間幅80fsec、繰り返し周波数1kHz、強度400  $\mu\text{J}/\text{pulse}$ に増幅して励起光として用いた。そのパルスを光学位相マスクに垂直入射し、0次の透過光を干渉により消去し、最大強度±1次の干渉光のみを取り出して同位相異経路の2つのパルスに分

割した。それらのパルスを用いて試料中に入射し、試料内にて時空間的に合致させることで過渡的干渉縞を生成して、フォノン-ポラリトン励起の駆動力を与えた。その干渉縞の間隔が励起されるポラリトンの波長を与え、その振幅の時間変化は入射したプローブ光の回折光強度を測定することによって観測される。

この方法を用いて、代表的な非線形結晶として知られている強誘電体 $\text{LiNbO}_3$ に関して最近報告されている5THz以下での数個の共鳴点の存在を検証した。その結果、共鳴点が報告されていたいずれの波数においても単一の振動数が観測され、分散関係における5THz以下の領域には共鳴点が存在しないことが明らかとなった。この結果は、共鳴点が無いとするRaman散乱の結果を支持するものである。さらに、アイソトープ誘起強誘電体である $\text{SrTi}^{18}\text{O}_3$ の強誘電相におけるソフトフォノン・ポラリトンを励起して、相転移にともなうその温度依存性を始めて観測することに成功した。その温度依存性と波数依存性を調べた結果、分散関係の温度依存性から静的誘電率の温度依存性とソフトモード振動数の温度依存性を同時に求めることができた。これにより従来の報告では確証が得られていなかった $\text{SrTi}^{18}\text{O}_3$ アイソトープ誘起強誘電性に伴うソフトモードの存在を結論することができた。これらの結果は、いずれも従来のRaman散乱法での困難を補う本研究で構築された新しいヘテロダインISRS法の特徴が発揮されたことによるものである。

これを要するに、著者はTHzダイナミクスについてその観測手法としてヘテロダインISRS法を新たに構築し、それを用いて誘電体、強誘電体物質におけるフォノン-ポラリトンに関して新知見を得たものであり、THzダイナミクスの発展に対して貢献するところ大なるものがある。

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。