

研究報告書

「光による熱の固有状態の創成と波動制御の実現」

研究タイプ: 通常型

研究期間: 平成22年10月～平成26年3月

研究者: 是枝 聡肇

1. 研究のねらい

物質科学では、「熱が発生する」と言う、「エネルギーが散逸する」とこととほぼ同義に解釈されてしまう。それは物質内の熱伝導が拡散的な「熱伝導方程式」に支配されるため、いちど系に与えられた熱エネルギーは熱力学第2法則に従って不可逆的に拡散するべきである、という固定観念に基づいていると思われる。しかしながら、あまり広くは認識されていないが、物質内の熱伝導はむしろ波動方程式によって記述されるのが本質であり、拡散的な「熱伝導」とは、物理的には「温度の波動」が強く減衰を受けた状態であると解釈されなければならない。

このような「温度の波動」(「第二音波」とも呼ばれる)は固体物質中においては1960年代から1970年代までの間にわずか3例の報告があるのみで、極めて希な現象である。しかし、1990年代頃から、物性物理学上極めて重要な物質群として知られるペロフスカイト型酸化物の一部の物質において「温度の波動」の存在が理論的、実験的に再検討され始めた。このペロフスカイト型酸化物という物質群は超伝導・強磁性・強誘電性・巨大応答特性など、応用上も極めて重要な物性を担う物質を豊富に含むが、これらの物性は温度に強く依存する素励起であるため、もし十分に制御された「温度の波動」をこれらの物質内に保持できれば、積極的かつ多彩な物性操作を実現できる可能性が拓ける。また、新たに熱を波動として保持できる物質を発見、あるいは開発し、熱を改めて固有の周波数・速度を持つ波動的な素励起として、科学者や社会に広く再認識させることは、物質科学における新たな普遍的視点を付加することとも位置づけられる。

そこで本研究では、誘導光散乱と呼ばれる手法を用い、光と熱(格子振動量子の統計的集団)との相互作用を通して、位相の揃った大振幅の温度の波動、いわば「コヒーレントな熱波動」を物質内部に創成することを計画した。そのために、まず超短パルスレーザーを用いた誘導熱・ブリルアン散乱システムを構築し、つぎにこれと極低温装置とを組み合わせ、チタン酸ストロンチウムをはじめとするペロフスカイト型量子常誘電体結晶における熱波動のコヒーレント励振を計画した。さらに、光学配置の制御によって、コヒーレント熱波動の周波数・波長などの系統的な波動制御を目指した。

2. 研究成果

(1) 概要

本研究では熱波動の候補媒質として、強誘電体の仲間である「量子常誘電体」と呼ばれる物質群に着目し、誘導ブリルアン散乱の手法を用いて、低温状態にした量子常誘電体内部に熱の波動を光で励起することを試みた。その結果、高温超伝導体の母材料としてもよく知られるチタン酸ストロンチウムという結晶においては、温度が下がるにつれて熱の波動の減衰が弱くなり、十分に低温では熱拡散現象が熱の波動伝搬へと姿を変えていく様子が観察され

た。さらに、レーザー光の操作によって熱の波動の振動数(波長)を自由に制御することにも成功した。このとき、誘導ブリルアン過程を通してレーザー誘起された熱の波動は、励起領域内で完全に位相を揃えて振動しており、「コヒーレントな熱の波動」の創成に成功したと言える。

(2) 詳細

研究テーマ A「コヒーレント熱波動励振システムの構築」

光の電場と物質の格子歪みとの結合を通して、レーザー光によって物質中にコヒーレントな振動が発生する過程を「誘導ブリルアン過程」という。誘導ブリルアン過程ではポンプ光として入射する 2 つの電場の間の周波数差と運動量の差を物質中の超音波の周波数と運動量に共鳴させることで、非線形分極を通して物質内部に位相の揃った大振幅の振動(一般的には超音波)を発生させることができる。通常は誘導ブリルアン過程による密度変化と同時に、電子励起状態の無輻射緩和による温度上昇(誘導レイリー散乱)を伴うことがほとんどであるが、そのような熱の成分による分極は非振動的な緩和的時間変化(指数関数的減衰)しか示さないと考えられてきた。しかし、非平衡性を適切に考慮したうえで、熱輸送過程を波動方程式に立脚した立場で書き直すと、熱の波動の減衰の度合いによって、熱による緩和型のプロファイルが振動型へと姿を変えることが導かれる。つまり誘導レイリー散乱が「熱による誘導ブリルアン散乱」へと変化することが起こり得る。

温度の波動を物質内部に創り出すプロセスとしては、パルスレーザーによるインパルス励起を採用した。この方法では交叉するポンプ光による干渉縞に沿って(二光子)吸収が起こり、十分に速い(1 ピコ秒未満の)無輻射緩和を経て物質内部に瞬間的に周期的温度分布が作られる。その温度分布は物質場が持つ特性にしたがって時間発展するが、その様子は連続発振のプロープ光を励起領域に入射すれば、その回折光強度の時間変化として実時間上で直接モニターすることができる。システム構築当初はプロープ光の回折強度を直接モニターしていたが、検出感度が低く、信号の観察にはポンプレーザーの強度を高くする必要があったため、レーザー

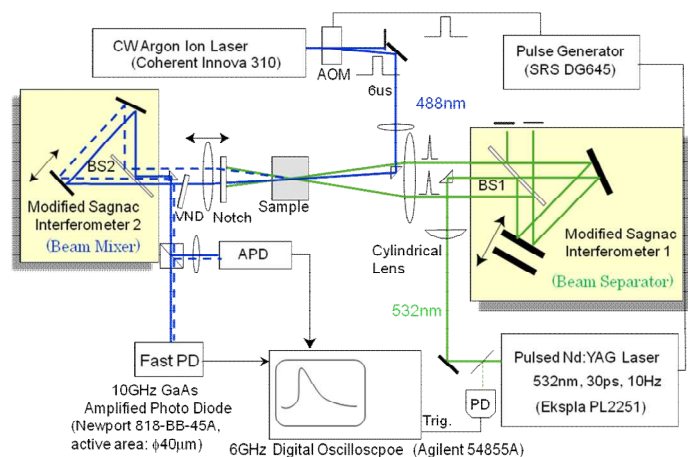


図 1 コヒーレント熱波動励振システム

一照射による結晶温度の上昇が無視できない問題となった。そこで検出感度を向上させるため、独自に構成した光ヘテロダイン検出法を用い、(正負の符号を取り得る)プロープ光の電場振幅を観測する方法へと変更した(図 1)。図 1 に示した検出系(左側)は、ポンプ光を分割するのに用いているのと同じ変形サニャック干渉計を、逆に局発光と信号光のミックスに用いるというポンプ側(右側)とは対称な配置となっている。この構成ではサニャック干渉計の特性によって局発光と信号光の間に位相差のゆらぎがまったく生まれなため、いかなる能動制

御も用いることなく、受動的に 100%の安定性を実現できた。この高度に安定化された光ヘテロダイン方式によって検出感度は 20 倍以上も向上し、長時間積算も可能となったため、ポンプ光のエネルギーを最小限まで弱めても十分な S/N 比で信号が記録できるようになった。

研究テーマ B「量子常誘電体におけるコヒーレント熱波動の励振と波動制御」

熱の波動が存在できる物質としては、1970 年代までに固体ヘリウム、半金属であるビスマス、高度に純化されたフッ化ナトリウムの 3 例だけが報告されていた。しかし、これらの物質では、積極的な物質設計によって、超伝導や強誘電性、強磁性といった多様な物性を付与できず、温度の波動の単なる観測で研究が終わっていた。一方、ペロフスカイト型酸化物の系統では高温超伝導をはじめとする多様な物性発現の実績があり、もしこのような系にコヒーレントな温度の波動が新しい素励起として登場すれば、温度に依存する様々な素励起との劇的な相互作用と新奇な物性の発現が大いに期待される。

私は本さがけ研究に先立って、高温超伝導体の母材料としても知られるチタン酸ストロンチウムと呼ばれるペロフスカイト型量子常誘電体結晶において、30K 以下の極低温で温度の波動が存在している可能性が高いことを自然光散乱法で報告していた。そこで研究テーマ A で開発したコヒーレント熱波動の励振システムを用いてチタン酸ストロンチウム結晶内部に熱の固有状態と呼ぶべき、位相の揃った大振幅の温度の波動を創り出すことを試みた。熱の波動は (i) 温度を下げると減衰が弱くなる (ii) 周波数が上がると相対的に減衰が弱くなる、という性質を持つため、温度変化および周波数変化の実験を通して、緩和型のプロファイルが振動型のプロファイルへと変化する臨界温度および臨界周波数を見出すことができると考えた。

図 2 にチタン酸ストロ

ンチウム (SrTiO_3) において励振された熱波動からの信号を示す。図 2 左パネルは実際の信号 (赤点) と熱+音波[論文 2]の関数 (青線) でのフィット結果であり、ほぼ完全に信号が再現されていることがわかる。信号の時間波形は低温に向かうに連れて正弦波的な立ち上がりを持つ丸いプロファイルへと変化している。図 2

右パネルは解析によって熱の信号に対応する部分を抽出したものであるが、約 12K の臨界温度より低温側では、熱由来の信号がマイナス側へも振動するようになるという結果が得られた。

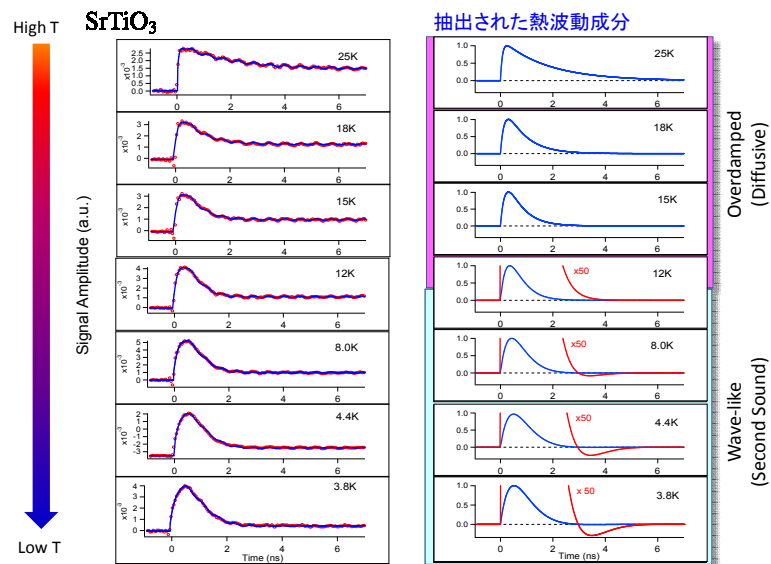
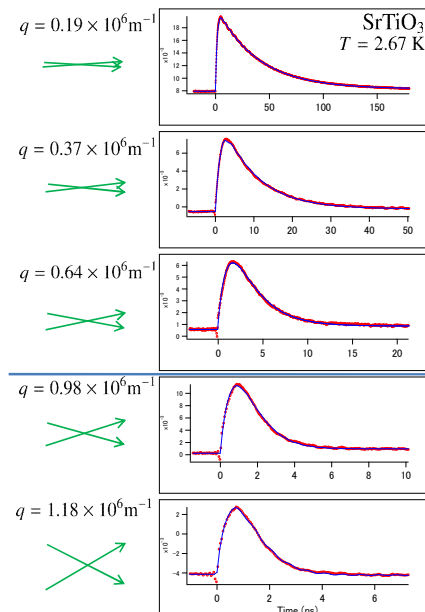


図 2 熱波動信号の温度変化

つぎに熱波動の制御性を確認するため、ポンプ光の交差角度を変えることにより、波数（および周波数）を系統的に変化させた。その結果を図 3 に示す。ポンプ光の交差角度と熱波動の波数はほぼ比例関係にあるため、交差角度が大きくなると熱波動の波数および周波数が大きくなり、一定温度下では振動数が減衰率を上回り、ついには過減衰の状態を脱して振動的な振る舞いに変わるはずである。その結果、この予想のとおり、信号のプロファイルは指数関数的な緩和型から正弦波の立ち上がりを持つ減衰振動型へと系統的に変化した。

図 4(a)に、解析によって得られた熱波動の固有周波数と減衰率の温度依存性を示す。臨界温度の約 12K を境にして両者の大小関係が逆転しており、低温側では振動が減衰に打ち勝っていることが確認された。また、図 4(b)に示すように、熱波動の周波数が波数に比例するという関係が確認された。これは熱波動（第二音波）に対する理論的な分散関係と一致しており、光学配置によって熱波動の周波数および波長が系統的に制御可能であることが実験的に示された。つぎに同じく図 4(b)より、減衰率と角周波数の大小関係が入れ替わる臨界波数の存在が明らかになり、臨界波数より高波数側では、振動が減衰に打ち勝っている様子が確認された。

これらの実験事実はポンプ光の照射領域で位相の揃った大振幅の温度の波動、すなわち「コヒーレントな熱の波動」が励起され、さらにその波動のチューニングにも成功したことを示している[学会発表 1、2、4]。この場合、決して単にある特定のフォノンモード（いわゆるコヒーレントフォノン）が励起されたわけではなく、フォノンの集団励起状態（フォノンの疎密波）として「温度の固有状態」が実現されていることを強調しておきたい。



※ 時間軸の変化に注意

図 4 熱波動信号の波数依存性

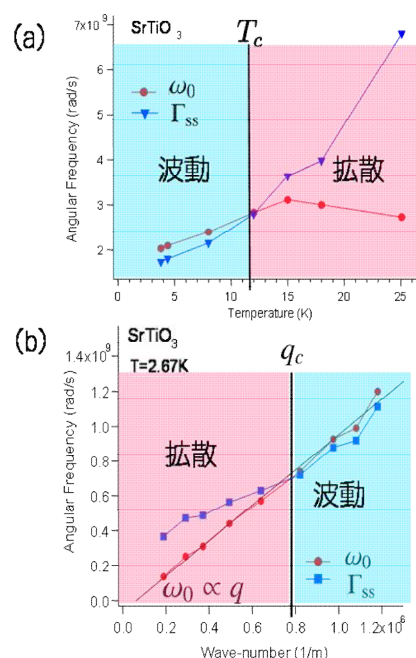


図 3 温度(a)および波数(b)による拡散→波動への遷移の様子

3. 今後の展開

熱の固有状態の存在を意識することによって、ある励起状態からの熱の発生を、明確に定義された波動関数（励起状態）間の相互作用として捉え直すことが許される。このような新しい視点

に立てば、従来は熱浴への緩和として見過ごされていたさまざまな現象を、緩和といった現象論ではなく、励起準位間の微視的な相互作用として記述し直すことができるはずである。本研究成果の積極的な発信を通じて様々な分野の研究者に、熱に対する意識改革が波及することを期待したい。もちろん市民にとってもこのような意識の転換がインパクトをもって迎えられることを期待したい。また、本研究の成果を基盤として、熱波動の共振器や熱レーザーの設計、また光によって制御された熱波動による物質内素励起のコヒーレント熱操作など、熱波動科学が新たに展開されることが期待される。

ただし、本研究の期間内に創成された熱の波動はマイナス側へ振動はしているものの、一周期内でほぼ減衰しきっており、寿命が非常に短い。この原因としては励起方法による波長の制限やフォノン密度の不足などが挙げられる。後者の原因に対しては、第二音波の存在に本質的な役割を果たしている特定の光学フォノンモード(強誘電ソフトモード)の状態密度を高強度テラヘルツ波レーザーを用いて人為的に増強することによって、減衰の影響を相対的に小さくすることで解決できると期待される。また、強誘電ソフトモードは強誘電体、および巨大誘電応答を示す「リラクサー」と呼ばれる物質群でも重要な役割を担っており、テラヘルツ波レーザーを用いた分光研究は、強誘電体・リラクサー科学の観点からも実験的な発展が大いに期待される[論文 1、3]。実際に、本研究の終盤には理研の光源開発グループ(南出泰亜チームリーダー)とも共同研究を開始しており、より効率的な熱波動発生を目指して実験を進めている。

4. 評価

(1) 自己評価

コヒーレントに振動する温度の波動を創り出すという大きな目標を掲げて研究を行ってきたが、実験システムに工夫を加え続けることで、温度の信号を通常我々がよく知る緩和的な振る舞いから、位相を揃えて正弦波的に振動しようとする状態へと変化する様子をデモンストレーションできたと考えている。また、波動制御の基本である周波数のチューニングも分散関係のデモンストレーションと同時に実現できたことから、コヒーレントな熱の波動が間違いなく生成されたことを示せたと考えている。本研究成果のハイライトに関しては、preliminaryな結果についてすでに国際会議にて口頭発表を済ませたものの、論文に関してはトップジャーナルへの掲載を目指し、より明瞭な振動状態の実現へ向けた実験的努力を研究期間終了まで続けた。しかし、客観的に 200%の説得力のある結果には至らないまま時間切れとなった。また、研究開始当初に予定していた熱波動の非線形性(熱ソリトン)の検証も、今後の課題として残った。これらの点に関しては「3. 今後の展開」で述べたように、高強度テラヘルツ波レーザーを用いた強誘電ソフトモードの励起によって、強誘電体・リラクサー科学と熱波動科学との融合分野という位置づけで、今後の新たな展開として押し進めたい。

(2) 研究総括評価(本研究課題について、研究期間中に実施された、年2回の領域会議での評価フィードバックを踏まえつつ、以下の通り、事後評価を行った)。

熱伝導は一般に拡散過程として認識されているが、波動として振る舞う事も古くから指摘されており、第2音波という名前もつけられている。しかし、その実験結果の報告も数件しかなく、熱がコヒーレントな波動として伝搬するという認識はなかった。

是枝研究者は、「量子常誘電体」と呼ばれる物質に着目し、誘導ブリルアン散乱の手法を用

いて、光で低温の量子常誘電体内部に熱の波動を光で励起することを試みた。具体的には、高温超伝導体としてよく知られているチタン酸ストロンチウムをとりあげ、熱の波動の振動数(波長)を自由に制御できることまでを示した。このとき、誘起された熱の波動は、励起領域内で完全に位相を揃えて振動しており、「コヒーレントな熱の波動」が生成されたことを確認した。これまで第2音波が報告されていたのは3例のみで、極めて希な現象であると思われてきた。量子常誘電体で第2音波励起が確認できたことは、量子常誘電体と総称される物質群は勿論、同様のフォノン分枝を持つ他の多くの物質においても第2音波が励起できる可能性がある。そうすれば、より一般的な物理現象として捉えることが可能となり、それらの物質による熱波動の共振器や熱レーザーの実現など、熱波動科学とよべる研究分野が開拓されることを期待する。

5. 主な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

1. A. Koreeda, H. Taniguchi, S. Saikan, and M. Itoh. "Fractal dynamics in a single crystal of a relaxor ferroelectric," Phys. Rev. Lett., **109**, 197601(1-5) (2012)
2. A. Koreeda and S. Saikan. "Higher resolution Brillouin spectroscopy by offset stabilization of a tandem Fabry-Pérot interferometer", Rev. Sci. Instrum. **82**, 126103(1-3) (2011)
3. A. Koreeda, S. Saikan, H. Taniguchi, and M. Itoh. "Power-Law Quasielastic Light Scattering Observed in Relaxor $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ ", Ferroelectrics, **415**, 24-28 (2011)

(2) 特許出願

研究期間累積件数: 0件

(3) その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

主要な学会発表

1. A. Koreeda, M. Takesada, S. Saikan, and T. Yagi, "Coherent second-sound generation in SrTiO_3 ", The 4th International Congress on Ultrasonics, Singapore, May 1-5 (2013)
2. A. Koreeda, S. Saikan, M. Takesada, and T. Yagi, "Optical Generation of Coherent Temperature-wave in Quantum Paraelectrics", Joint of The 11th International Symposium on Ferroic Domains and Micro- to Nanoscopic Structures (ISFD) and the 11th Russia/CIS/Baltic/Japan Symposium on Ferroelectricity (RCBJSF), Yekaterinburg, Russia, Aug.20-24 (2012)
3. (招待講演) A. Koreeda, "Fractal Dynamics in Relaxors: High-resolution, Broadband Light-scattering Study" Joint of The 11th International Symposium on Ferroic Domains and Micro- to Nanoscopic Structures (ISFD) and the 11th Russia/CIS/Baltic/Japan Symposium on Ferroelectricity (RCBJSF), Yekaterinburg, Russia, Aug.20-24 (2012)
4. A. Koreeda, S. Saikan, M. Takesada, and T. Yagi, "Coherent Second-sound Generation in Quantum Paraelectrics", The 14th International Conference on Phonon Scattering in Condensed Matter (PHONONS2012), Ann Arbor, USA, July 8-13 (2012)
5. (基調講演) 是枝聡肇 「リラクサーの自己相似な周波数応答: 高分解能光散乱分光」 第

21 回日本 MRS 学術シンポジウム 横浜市波止場会館 12 月 20 日 (2011)

6. A. Koreeda, “Optical generation and wave control of heat eigenstates”, Academia Sinica & JST Joint Workshop on “INNOVATIVE USE OF LIGHT AND NANO/BIO MATERIALS,” International Conference Hall, Academia Sinica, Taipei, Taiwan, May 26–27, (2011).

解説・総説

1. 是枝聡肇 「リラクサーのフラクタル・ダイナミクス: 巨大誘電応答の理解を目指して」セラミックス, **48**, No.7, 538–541 (2013)