量子格子系における非線形局在励起の研究

メタデータ	言語: Japanese 出版者: 公開日: 2018-12-10 キーワード (Ja): キーワード (En): 作成者: 佐藤, 政行, Sato, Masayuki メールアドレス: 所属:
URL	https://doi.org/10.24517/00052888

This work is licensed under a Creative Commons Attribution-NonCommercial-ShareAlike 3.0 International License.

量子格子系における非線形局在励起の研究

18340086

平成18年度～平成19年度科学研究費補助金
（基盤研究（B））研究成果報告書

平成21年3月

研究代表者　　佐藤政行
金沢大学自然科学研究科

金沢大学附属図書館
1300-05144-2

量子格子系における非線形局在励起の研究

18340086

平成 18 年度～平成 19 年度科学研究費補助金
（基盤研究（B））研究成果報告書

金沢大学附属図書館
1300-05144-2

平成 21 年 3 月

研究代表者　　佐藤政行
金沢大学自然科学研究科准教授

著　者　寄贈

＜はしがき＞

研究組織
研究代表者：佐藤政行（金沢大学自然科学研究科准教授）

交付決定額（配分額）　（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合　計
平成 18 年	14, 600, 000	4, 380, 000	18, 980, 000
平成 19 年	900, 000	270, 000	1, 170, 000
総　計	15, 000, 000	4, 650, 000	20, 150, 000

研究発表
（１）雑誌論文
1. Management of localized energy in discrete nonlinear transmission lines,
M.Sato, S.Yasui, M. Kimura, T. Hikihara and A. J. Sievers,
EuroPhysics Letters **80**, 30002(pp.1-5)(2007).

2. "Visualization intrinsic localized modes with a nonlinear micromechanical array"
M. Sato and A. J. Sievers,
Low Temperature Physics (Fizika Nizkih Temperatur)
Vol.**34**, N7, pp.687-694 (2008).

（２）学会発表
1.日本物理学会北陸支部　2007 年 12 月 1 日、富山県立大
ＴＨｚ非線形分光装置の作成
山口世理，吉池貴子，佐藤政行

2.日本物理学会　2008 年 3 月 23 日　近畿大学
ＴＨｚ領域での非線形４波混合分光装置について
山口世理，吉池貴子，佐藤政行

研究成果による産業財産権の出願・取得状況
なし

研究成果

目次

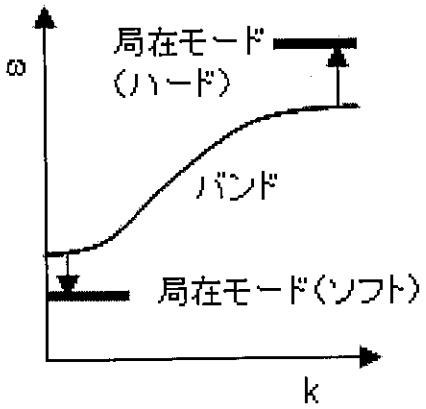
1　はじめに……1
1.1　非線形局在励起について……1
1.2　固体の格子振動を自由度とする非線形局在励起……3
2　THz 領域での非線形４波混合分光装置について……5
2.1　マイクロ波での４波混合測定……5
2.2　３次の非線形性とサイドバンド構造……10
2.3　２次の非線形性とサイドバンド構造……14
2.4　位相変調、分散性と非線形性のつり合い……16
2.5　THz 領域での４波混合分光装置……19
2.5.A　TEA 炭酸ガスレーザー……21
2.5.B　CW 炭酸ガスレーザーと遠赤外レーザー……25
2.5.C　フーリエ分光器……27
2.5.D　チタンサファイアレーザーと時間分解分光……30
2.6　同期の問題……33
3　まとめと今後の計画……37
3.1　まとめ……37
3.2　最近の固体における非線形局在励起研究の発展……37
3.2.A　NaI について……38
3.2.B　反強磁性体$(C_2H_5NH_3)_2CuCl_4$について……38
3.3　今後の計画……41
参考文献……42
参考資料……45

1　はじめに

我々は固体の非線形局在励起を生成・検出し、また固体の相転移現象の研究に応用する目的で本研究をスタートさせた。本章では非線形局在励起全般と固体の非線形局在励起について述べる。２章ではマイクロ波４波混合、サイドバンド構造、３次と２次の非線形性、測定装置について述べる。本研究では残念ながら当初の目的を完全に果たしたとは言い難い。これは装置の故障や予想しなかった遠赤外レーザーとチタンサファイアレーザーの同期の問題、その他のレーザーの整備に時間がかかったためである。しかしながらチタンサファイアレーザーを用いても非線形時間分解分光が可能であると解析的に示すことができた。（学会発表の１、２）また、本研究のきっかけとなった反強磁性スピン系でのサイドバンド構造を理解し、固体格子での２次の非線形性による非線形局在励起について調べるために電気格子での非線形局在励起［研究発表雑誌の１］ならびに２次の非線形性によるサイドバンド構造の知見を得られた。さらに格子系での非線形局在励起は分散図を用いて理解されるが、分散図上でもソリトンのように分散性と非線形性のつり合いで局在励起が生成されていると理解された。[研究発表雑誌の２］そのほか、４波混合スペクトルにおけるサイドバンド構造の問題について３次、２次の非線形性どちらでもサイドバンド構造が観測されること、各種レーザーによるテラヘルツでの非線形分光装置の整備について記述した。最後にまとめ、最近の固体における非線形局在励起研究の発展、今後の計画について述べる。

1.1　非線形局在励起について

固体の格子性と非線形性が組み合わさると、非線形局在励起（intrinsic localized mode, または discrete breather）と呼ばれる全く新しいダイナミックな現象が生じうる。[1,2] 一様な長波長励起が大きな振幅では不安定になり、数格子程度のナノサイズの局在励起に振幅を強めながら成長する。このような現象は、８０年代後半より Sievers と武野によって提唱されていた。[3] 一般に格子を扱う問題では、ノーマルモードを表示するために分散図を用いる。バンドと呼ばれるエネルギーや周波数が連続して存在する周波数領域が現れる。格子における局在励起は平面波状態であるバンドより外側に生成される。不純物による状態の周波数シフトを非線形性により行うのが非線形局在励起である。



ホストバンドと局在モードの関係

図 1. ホストバンドと局在モードの関係

図 1のような分散関係のとき、系が励起により共鳴周波数が増加する正の非線形性（ハード非線形性）をもつ場合にはバンドの頂上に、あるいは励起により共鳴周波数が減少する負の非線形性（ソフト非線形性）をもつ場合にはバンドの下に局在励起ができる。その実空間での振動形状は、図 1の正の非線形性の場合にはゾーン境界の平面波振動形状に局在形状のエンベロープをかけた図 2のような形をしている。[2]　非線形性は一様でも、局所的な振動励起により、局所的な非線形効果が引き起こされ、これが局所的な振動励起の非線形ノーマルモードを形成すると考えられる。

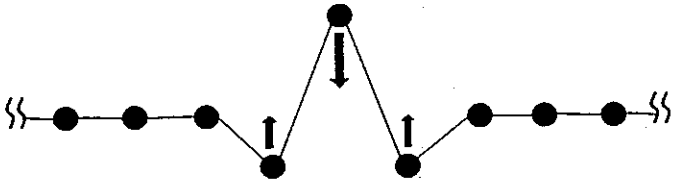


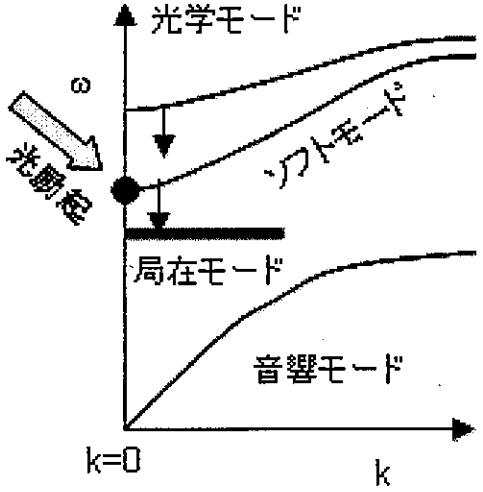
図 2. 非線形局在励起の実空間での振動の様子

このアイデアは多くの非線形格子に応用できることがわかり、９０年代後半から急速に研究が進んで来た。不純物や欠陥なしにエネルギー局在が起こるので、プログラマブルな励起であり、応用面も興味深い。基礎的な研究においては、エネルギーの輸送担体や相転移での核生成が議論されている。巨視的格子ではすでにフォトニック結晶[4]、ジョセフソン結合回路[5,6]、Micro Electro-Mechanical Systems(MEMS)[7]などで実験、理論的研究がなされている。

一方、固体における非線形局在励起の研究は局在サイズが小さく、実空間で画像観測することはできない。このためにあまりはかどっておらず、分光学的に周波数スペクトルを通じての実験が主であり、まだまだ困難な状況である。白金錯体についての理論的、実験的研究[8]、反強磁性体についての実験的研究[9, 10]、また最近は固体ウラニウムについての中性子実験[11]などがある。我々は固体の格子振動を自由度とする非線形局在励起について研究するため、テラヘルツ（遠赤外）領域での非線形４波混合分光装置を作成し、$SrTiO_3$などの量子常誘電体について研究を行うことを目指した。

1.2 固体の格子振動を自由度とする非線形局在励起

固体格子の非線形性はほとんどの場合負の非線形性をもち、バンドの下側にのみ非線形局在モードができる。通常の２原子格子の分散関係では、光学モードの底はゾーン端にあるがゾーン端の励起は実験的に難しい。ところが、誘電体、とくに強誘電性相転移を起こすような物質は、ゾーン中心でTOモードがソフト化するので、バンドの底はk＝０にあり、通常の光照射でTOモード下端を励起できる。したがって、非線形局在励起を実験的に制御できる環境にあり、非線形局在励起の研究に都合が良い。（図 3）また、非線形局在励起とソフトモードや、揺らぎとの関係も非常に興味深い。



強誘電体の分散関係

図 3　強誘電体の分散関係

誘電体のなかでも、量子常誘電体と呼ばれる$SrTiO_3$や$KTaO_3$は量子揺らぎの効果が強誘電性相転移を妨げると考えられており、量子揺らぎと非線形局在

モードの競合・協調は興味深い。これらの物質ではゾーン中心モード（TO モード）がソフト化する傾向を見せるが、完全にソフト化できない。一方、非線形局在モードは前の図のように、光学モードと音響モードの間に生成する可能性があり、非線形局在ギャップモードと呼ばれる。非線形局在モードの存在が、ソフトモードの完全ソフト化を防いでいるのと考えている研究者もいる。これらの物質はまた、Ca のドープでリラクサー誘電体の振る舞いを示す。最近、Bishop のグループは非線形局在ギャップモードがフリーズするとナノサイズの極性領域を作り、これがリラクサーの発現に関わるという理論的予想を立てた。[12]

構造相転移におけるソフトフォノンは自由エネルギーへの格子の非線形性による寄与とエントロピーの兼ね合いで理解されている。単純化された理論では一つ～数個程度のユニットセル内での原子の移動が考慮され、それ以外の格子の部分は考慮されているユニットセルのコピーとして扱われる。すなわち同一の変位をしていると仮定されている。ところで、転移温度近傍では核生成などの格子全体にわたって均一とは言えない現象が起きている可能性がある。ソフトフォノンの場合は転移温度近傍では周波数が非常に下がり、本当に０になるまでフォノンのように格子全体で均一に振動しているかどうかを実験的に判断するのは非常に難しい。空間的に一様でないような振動、すなわち非線形局在励起のような非線形振動が関与している可能性は大いにある。

2　THz 領域での非線形４波混合分光装置について

2.1 マイクロ波での４波混合測定

ここでは、過去にマイクロ波帯で行われた反強磁性体$(C_2H_5NH_3)_2CuCl_4$についての研究について解説する。テラヘルツ帯での装置は、マイクロ波での経験を基に設計された。テラヘルツ帯でもマイクロ波帯と同様な問題が起こると考えられる。また、マイクロ波帯での研究を推進する上で、数１００ｋHz 帯でのマイクロエレクトロメカニカルシステムでの研究が非常に役立った。そのため、周波数が大きく異なるが、マイクロ波帯などの研究を理解することが非常に重要であると考え、ここに述べることにした。

反強磁性体$(C_2H_5NH_3)_2CuCl_4$は２次元シート上に銅スピンがあり、そのシートが重なった構造をしている。シート内のスピンは強磁性的に強く相互作用しておりシート間には弱く反強磁性相互作用がある。Sievers らはこれを反強磁性的に整列している１次元スピンと考え、シミュレーションを行った。反強磁性共鳴周波数の少し下の周波数で系を交流磁場で励起すると ILM が生成されるが、それによって吸収スペクトルが広がると予想された。[13]　図４は２００程度の格子サイズでスピンモーメントを格子全体に平均して得られたスペクトルである。吸収は波数ｋ＝０で起こるので、格子全体で平均したモーメントをフーリエ変換したスペクトルを表示している。実験を行ってみると、励起周波数をうまく調節したときのみ広がった吸収スペクトルが得られる。しかしながら励起周波数を共鳴周波数に近づけると、共鳴的にエネルギーを吸収してしまい、ほとんど同じ線幅で周波数位置だけが低下した状態が得られる。これは、あまりにも多くのエネルギーがスピン系に供給されたので、非常にたくさんの ILM がカオス的に生成されスピン系の温度が格子全体で高くなってしまった状態に対応すると考えた。

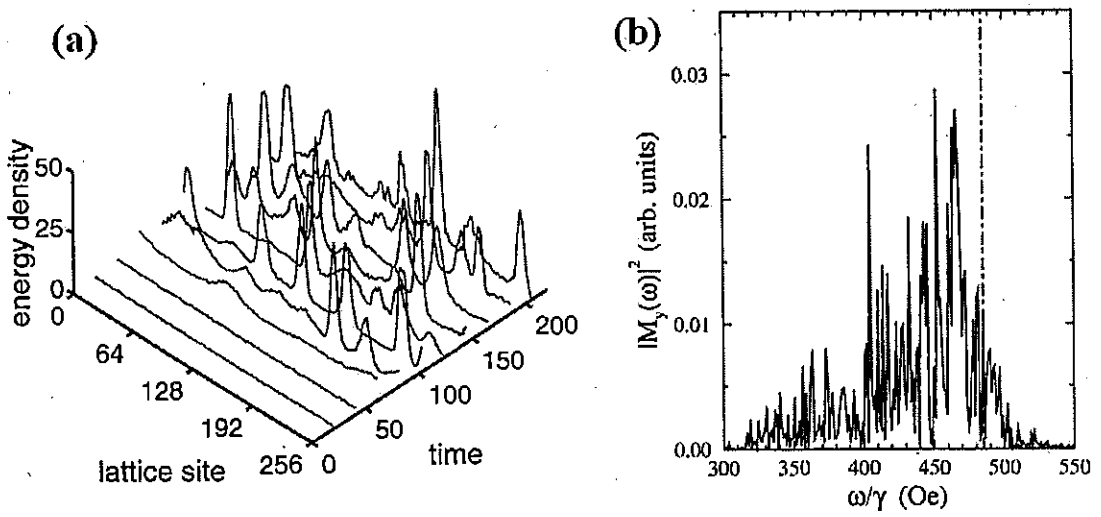


図 4. (a)励起後に生成された ILM とそれによる(b)スペクトルの広がり。点線の位置が励起周波数、反強磁性共鳴周波数は 512Oe(～1.4GHz)。

このような違いが生じた理由はシミュレーションでは２００格子点程度でしか計算していないが実際には 10^{23} 個もの自由度があることである。２００点では、カオス的な挙動をしていても時間を止めれば ILM が認識できる。巨大格子では多量に存在する ILM は平均されて見えてしまう。２００点でのある時間幅での平均は分布していたとしてもそれと似た状態からなる巨大系での平均は、元の線幅と同じかもしれない。例えて言えば、ランダム信号の短時間平均は分布していても、長時間平均は（本当にランダムならば）０になる。ILM が多いほど、ランダム信号源が増えるので同じ時間で見ても長時間平均に相当してしまう。このことは、ILM を吸収スペクトル中に ILM として判別して観測するのには系を加熱しすぎてもいけないことを示している。そこで、大強度短パルスマイクロ波で系を励起する方法が採用された。わずかな数の ILM を短パルスの初期で生成することを目指した。これはパルスの初期と終わりのスペクトルは、振幅が急激に変化するために周波数分布が大きいことを利用している。（図 5 参照）パルスの中間では、わずかに生成された ILM のみが引き続いて励起され、他の部分にはエネルギーは供給されない。このため、生成された ILM の周波数分布が大きくなる。中間で系を加熱しないように励起周波数は共鳴周波数から離れている必要があるので、大強度なパルスが必要になる。

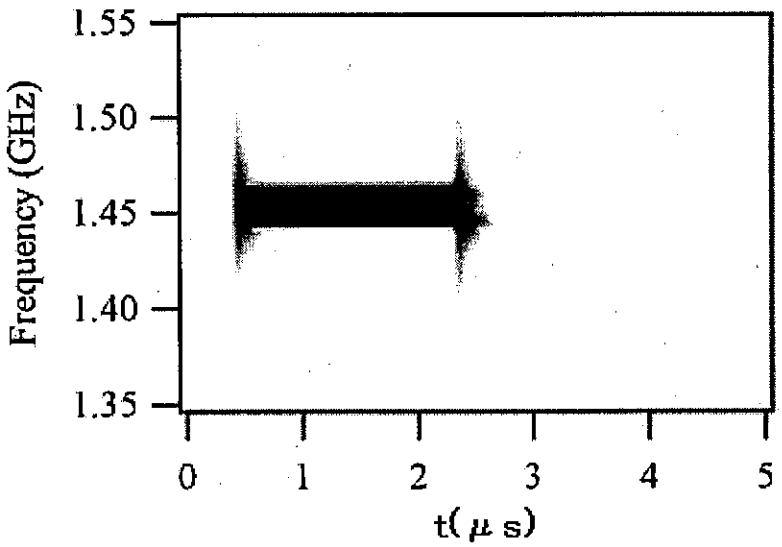


図 5　短パルスマイクロ波のスペクトラムアナライザーを用いて測定された周波数スペクトルの時間変化の実測例。パルスの始まりと終わりの部分でスペクトルが広がっているのは振幅が急激に変化するため。

図 6 にマイクロ波帯での測定装置の概略図を示す。3 台の発振器と 1 台の検出器（スペクトラムアナライザー）を用いている。初期強励起用に短パルス発振器（f_1）を用い、吸収測定用に弱い CW のマイクロ波源（f_3）を用いた。さらにもう一台、別の発振器（f_2）が用意され、生成された ILM を持続励起することが意図された。これにより ILM の性質を長時間観測することが試みられた。

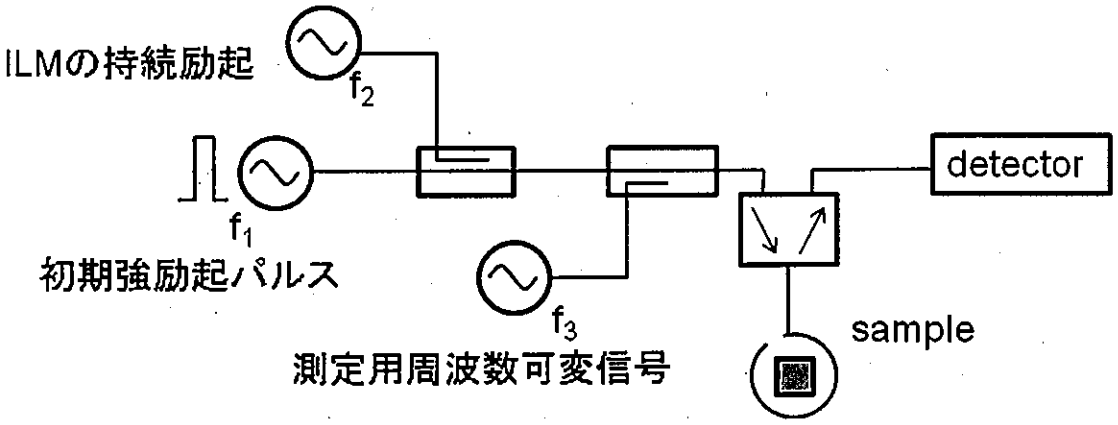


図 6. マイクロ波帯での測定装置

それぞれの周波数を図 7 に示す。スピン波のバンドの底は 1.36GHz で ILM を保持したい周波数を 1.32GHz、パルス励起の周波数はそれより低く 1.29GHz である。この物質は２軸性でスピンは容易軸に向いている。反強磁性体では隣り合うスピンの生成する反対符号の磁場が共鳴周波数を左右する。励起によりスピンが傾くと、容易軸方向の磁場が減少するので共鳴周波数は下がる。したがってバンドの底より下に、ILM が生成される。

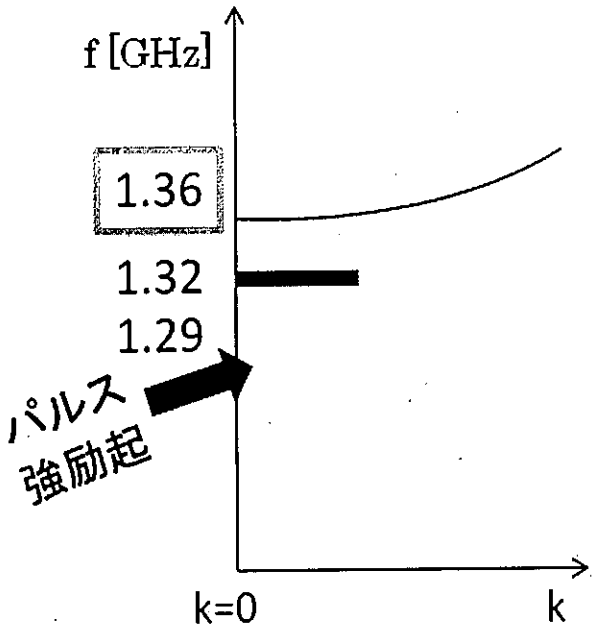


図 7. $(C_2H_5NH_3)_2CuCl_4$ のバンドの底近傍の模式図

吸収の時間変化を図 8 に示す。[10] 吸収の強い部分を濃く表示してある。パルス励起で吸収がブロードになるが、１０～２０μs 程度で再び元の細さに戻る。その後はスピン-格子緩和で元の共鳴周波数にゆっくり戻る。点線の位置に中程度の強度の ILM 持続励起用の CW マイクロ波源を置き、吸収分光、非線形分光スペクトル測定を行った。図 9 にその結果を示す。わずかな数の ILM のみを共鳴励起することをイメージして各周波数はセットされた。吸収スペクトルからわかるように ILM 近傍には何も観測されず、反強磁性共鳴だけが大きなピークを作っている。一方非線形４波混合スペクトルには f_2 の両側にサイドバンド構造が見て取れる。このことから、f_2 に共鳴しているのはわずかな数のスピン自由度であり、非線形４波混合法が非線形励起体である ILM を検出するのに有効な方法であることがわかる。

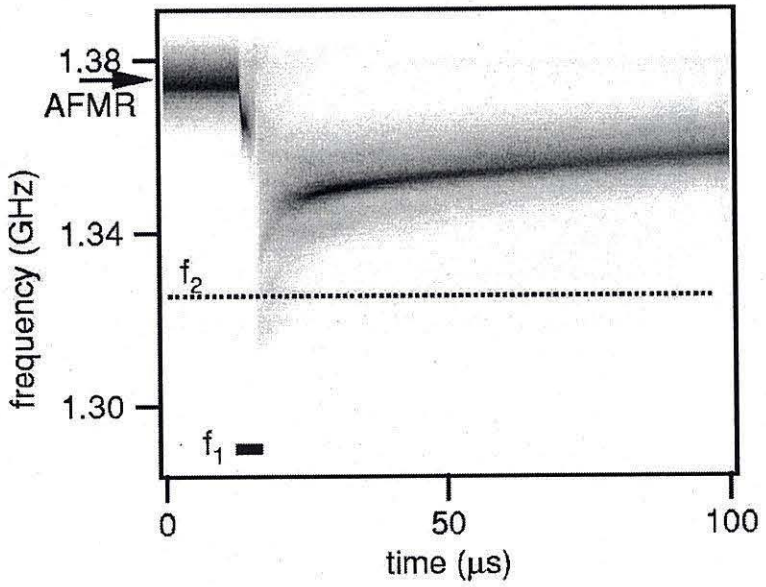


図 8. 反強磁性体での吸収の時間変化。f_1はパルス励起を示す。f_2は持続励起用の CW 励起周波数位置。AFMR は線形状態での反強磁性共鳴（一様モード）周波数。

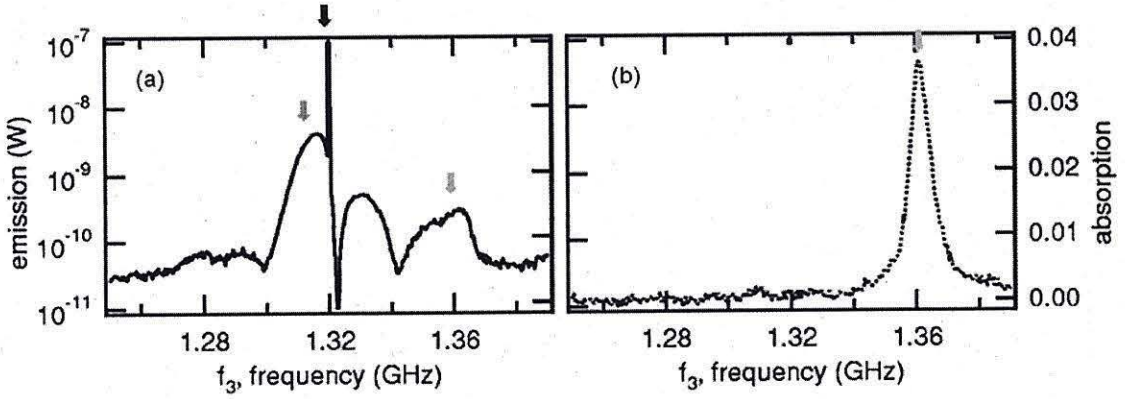


図 9. 反強磁性体での(a)非線形４波混合スペクトルと(b)線形吸収スペクトル。1.36GHz はバンドの底の反強磁性共鳴周波数。f_2は 1.32GHｚ。非線形４波混合スペクトルの 1.32GHz の両側のサイドバンド構造が ILM からの信号。

この非線形４波混合信号のピーク位置での時間変化を図 10 に示す。ステップ状に現れるシグナルの減少は、ILM の崩壊に伴うシグナルの減少と考えられている。したがって、非線形４波混合スペクトルを測定したことが、反強磁性体での非線形局在励起研究におけるキーポイントであった。サイドバンド構造の存在は、持続励起される非線形励起の存在の証拠であり、ステップ構造が個別励起としての ILM を強力に示唆している。

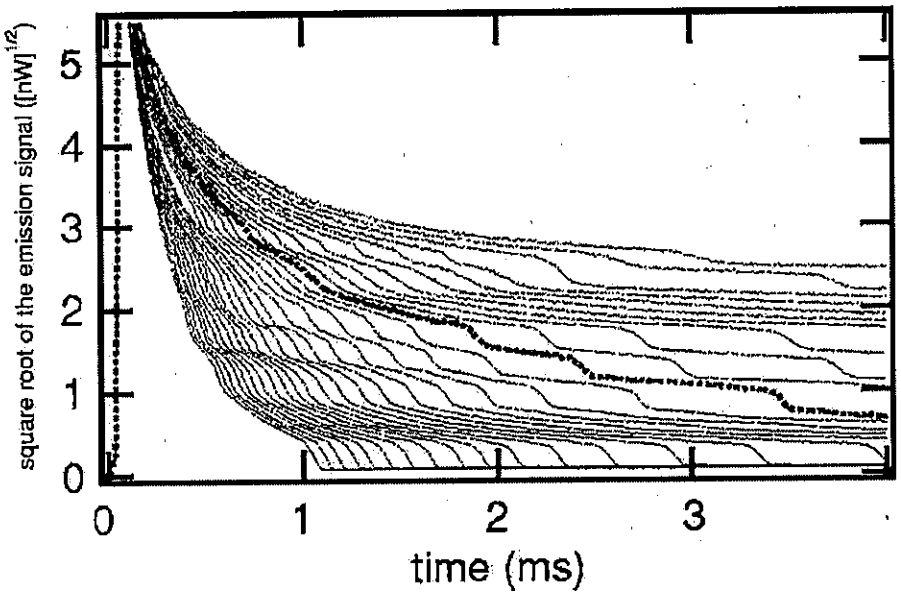


図 10. 非線形４波混合信号の時間変化。図 9 左のピーク位置での時間変化。ステップは ILM の崩壊に対応する。

2.2 ３次の非線形性とサイドバンド構造

反強磁性体での成功は４波混合スペクトルを測定したこと、サイドバンド構造を見出したことにある。従ってサイドバンド構造の理解はキーポイントである。ここでいうサイドバンド構造とは、４波混合スペクトルにおける共鳴構造であり、単なる４波混合信号の存在以上の事柄である。

ここで、反強磁性体で図 9 のようなサイドバンド構造が現れる理由を考えてみる。簡単のため、１軸性の反強磁性体を考える。ハミルトニアン

$$H = 2J\sum_n \vec{S}_n \cdot \vec{S}_{n+1} - D\sum_n S_n^{\,2} \qquad (1)$$

から計算される磁場

$$\vec{H}_{eff} = -\nabla_{S_n} H = -2J\left(\vec{S}_{n-1} + \vec{S}_{n+1}\right) + 2DS_n^z \vec{e}_z \qquad (2)$$

を運動方程式

$$\frac{d}{dt}\vec{S}_n = \gamma \vec{S}_n \times \vec{H}_{eff} = \vec{S}_n \times \vec{H}_{eff}\,(\gamma=1) \qquad (3)$$

に入れ、次の置き換え

$$\begin{aligned} S_n^+ &= S_n^x + iS_n^y \\ S_n^- &= S_n^x - iS_n^y \end{aligned} \qquad (4)$$

をすると

$$i\frac{ds_n^+}{dt} = -2JS\left[\left(s_{n-1}^z + s_{n+1}^z\right)s_n^+ - \left(s_{n-1}^+ + s_{n+1}^+\right)s_n^z\right] + 2DSs_n^+ s_n^z \qquad (5)$$

が得られる。非線形性を調べるために簡単のため、k=0 モードのみを考慮する。$s^z = s_A^z = -s_B^z$ を使って運動方程式を簡略化すると、

$$\frac{d^2 s^+}{dt^2} + \omega_0^2 \left(s^z\right)^2 s^+ = 0 \qquad (6)$$

が得られる。ここで $\omega_0 = 2S\sqrt{4JD + D^2}$ は線形の共鳴周波数である。

（6）式は $\left(s^z\right)^2 = 1 - \left|s^+\right|^2$ を使って

$$\frac{d^2 s^+}{dt^2} + \omega_0^2 \left(1 - \left|s^+\right|^2\right) s^+ = 0 \qquad (7)$$

と書き換えられるが、これは力学モデル

$$m\frac{d^2 x}{dt^2} + k_2 x + k_3 x^2 + k_4 x^3 = 0 \qquad (8)$$

と比較すると２次の調和ポテンシャルに４次の非線形ポテンシャルが加わった系に相当することがわかる。光学では４次の非線形ポテンシャルの効果を３次の非線形性というので以後このように言う。

$k_3 = 0$ の場合の（８）式の運動方程式は、MEMS 振動子系での非線形方程式と同じ形をしている。MEMS 系では $k_4 > 0$、反強磁性スピン系では $k_4 < 0$ と符号は違うもののどちらも非線形性が３次であるという点で共通している。MEMS 系でも実験でサイドバンド構造は観測されている。[14]　このサイドバンド構造については、サイドバンドの位置が解析的に導出できていないなど未だはっきりとは理解されてはいない。

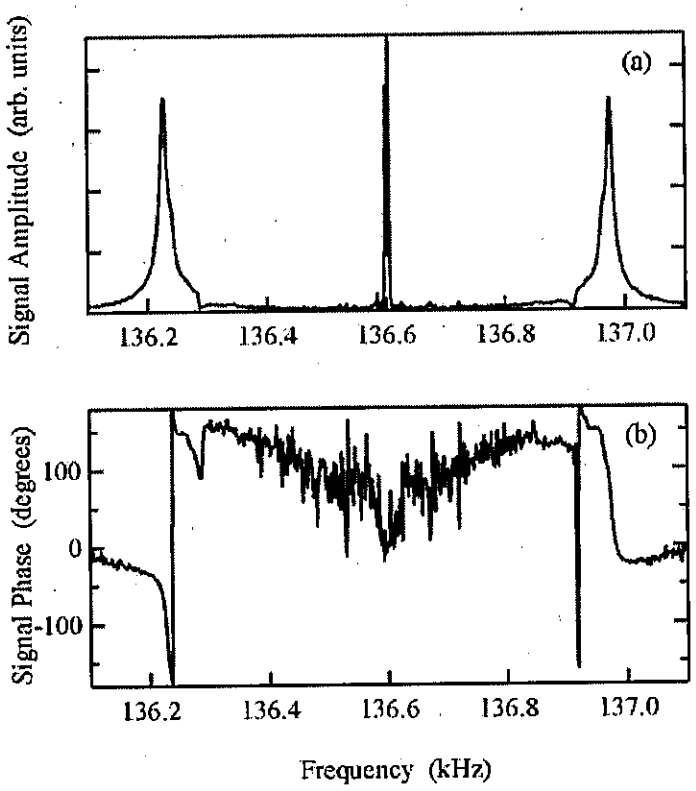


図 11. MEMS 系での ILM のサイドバンド構造例（実験値）。主励起周波数は 136.6 k Hz である。

サイドバンド構造について、われわれが考えているメカニズムを力学的モデルに基づき以下に説明する。エネルギーの損失過程を含む非線形振動子を強制振動させると、一般には Duffing 振動子系となり、その強制振動の周波数応答は左右非対称になる。図 12 にシミュレーションで得られた式（8）$k_3=0$、$k_4>0$ の場合の応答を示す。[15]この場合、主励起周波数が上昇するに従って共鳴周波数も上昇するのでこのような応答が得られると考えられる。すなわち非線形状態での線形共鳴周波数は励起周波数よりもわずかに高い。共鳴周波数の上昇が励起周波数に追従できなくなると、共鳴を維持できなくなり急激に応答が低下する。今、146 k Hz の位置の非線形励起状態に主励起 f_2 を固定し非線形状態を保持する。第二のサイン波励起源 f_3 を用意し周波数の関数として f_3 の周波数成分のみの応答をプロットすると下図のようにサイドバンド構造が現れる。右側のピークは、主励起周波数よりも 0.25 k Hz 高い位置の共鳴周波数に第二のサイン波励起源が共鳴するために起こる。左側のピークは、４波混合過程において生成された周波数 $2f_2-f_3$ のシグナルが共鳴構造に共鳴するために生成される、

一種のゴーストである。$k_4 > 0$ の場合真の共鳴構造は主励起より高い周波数側に位置し、その線幅は緩和時間で決まる。f_3 または $2f_2 - f_3$ がその共鳴構造に共鳴すると考えると、サイドバンド構造が理解できる。この様子を、f_3 を関数として全体の周波数スペクトルの分布を模式的に表示したのが図 13 である。直線 $f = f_3$ と $f = 2f_2 - f_3$ 上に f_3 に原因する応答が現れる。

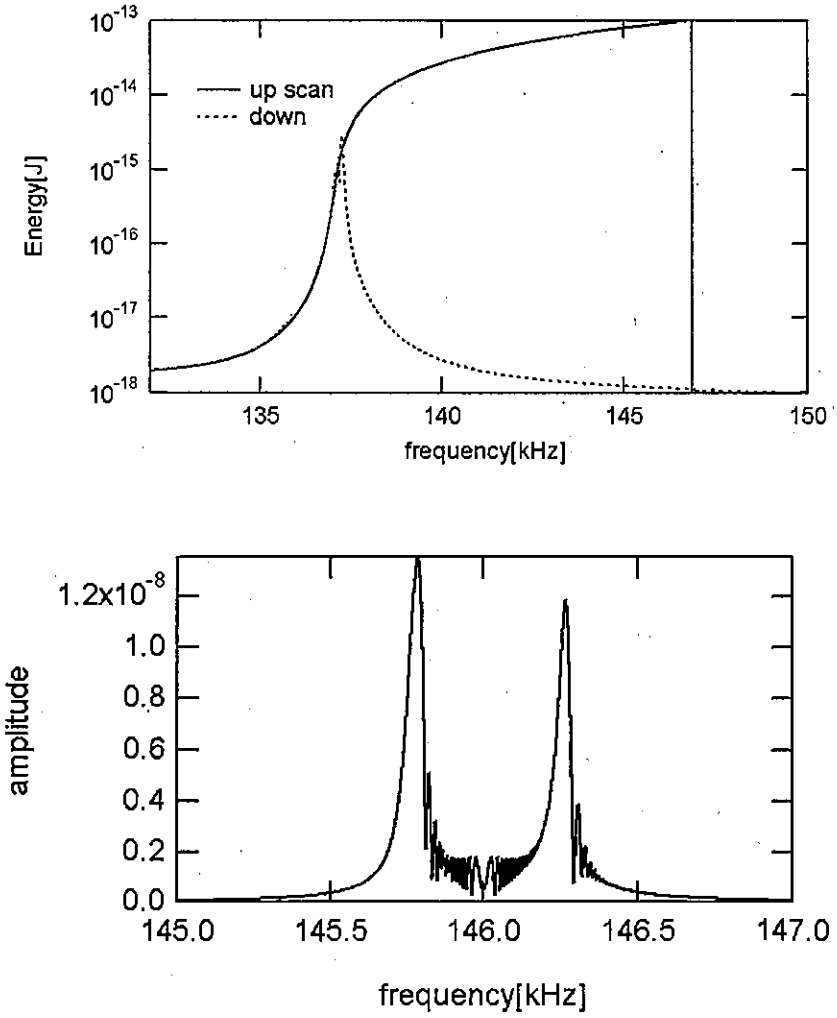


図 12. シミュレーションによる３次の非線形性の場合の主励起周波数に対する応答（上）と、主励起 f_2 を 146 k Hz に保持した場合の弱い副励起に対する応答（下）。

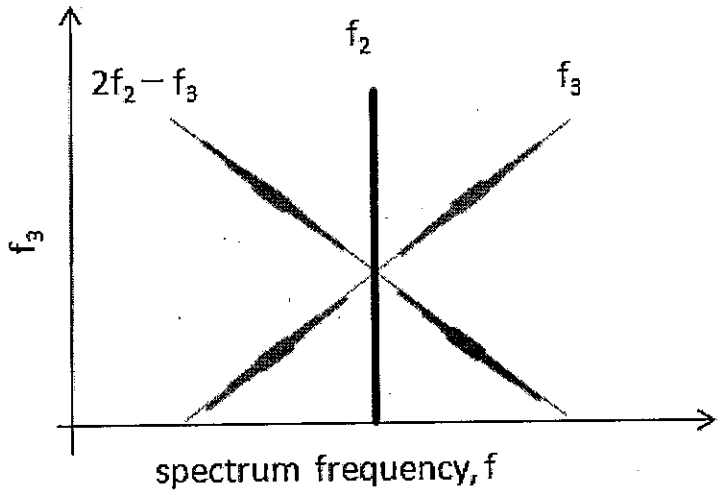


図 13　一定周波数の主励起（周波数 f_2）により非線形状態に置かれた３次の非線形振動子を副励起（周波数 f_3）により摂動をかけた場合の周波数スペクトルの分布の模式図。線の太い部分は応答が大きいことを示す。f_3 を固定した場合、周波数スペクトルは f_2、f_3、$2f_2-f_3$ の３つの線スペクトルからなる。f_3 を掃引すると上のように直線 $f=f_3$ と $f=2f_2-f_3$ 上に強度分布が得られる。図 12（下）は、この図の直線 $f=f_3$ 上の応答をプロットしたもの。

以上のことから、持続的に発振器 f_2 で維持された非線形状態について、別の発振器 f_3 を刺激とし、f_3 でのシグナルを検出する一般化された線形分光を行うとサイドバンド構造が現れると理解される。また、$2f_2-f_3$ でのシグナルを検出するのは４波混合分光（放射）と呼ばれるがそのスペクトルにも同じ理由でサイドバンド構造が現れる。前者の場合、入力されたエネルギーの減少を吸収として観測するので高感度にするには高い精度でエネルギーを測定する必要がある。後者（放射測定）の場合非線形性がなければシグナルが現れないので観測がより容易で感度が高くなる。

2.3　２次の非線形性とサイドバンド構造

固体格子の非線形局在励起を考えるとき、今まで述べてきた反強磁性スピン系や MEMS 振動子系が３次の非線形性による局在励起であったのに比べ固体の格子振動のそれでは２次の非線形性の方が大きいかもしれないことに注意を払う必要がある。

我々は本研究と関連して２次の非線形性による非線形局在励起の可能性を実験的に検証するため、電気的な回路格子でダイオードを非線形素子として用い

て局在励起を生成、制御した。[16] ダイオードは２次の非線形性を強く持つ非線形素子である。２次の非線形性の特徴は、ポテンシャルで考えると正負の変形に対して非対称であるので、サイン波のような動的な励起により静的な変位が生じること、その静的な変位により共鳴周波数が低下することである。共鳴周波数の変化は式（８）で考えるとk_3の符号に依らない。電気格子ならばサイン波的な電荷の振動が静的な電荷を生じる。固体格子の場合は熱膨張の原因である。

固体格子の場合、巨視系のように実際に実空間で画像化して観測することは無理がある。現在われわれが考えている方法は反強磁性体での実験のように周波数空間での分光による方法である。反強磁性体では、４波混合スペクトルにサイドバンド構造が現れたことが、非線形状態が持続保持されている証拠となった。したがって２次の非線形性の場合にもサイドバンド構造が現れるかどうかは重要な問題である。

図 14 に力学モデルでのシミュレーションにより確かめられた２次の非線形性の場合のサイドバンド構造の例を示す。上図は主励起に対する応答、下図は第二の副励起に対する応答である。主励起に対する応答は負の非線形性を示すがこれはk_3の符号に依らない。この場合共鳴構造は主励起周波数より低い周波数にあると考えられる。$2f_2 - f_3$のシグナルは２次の非線形性を２回用いて生成される。以上より、固体の格子振動の場合でも４波混合法が有効であると考えられる。

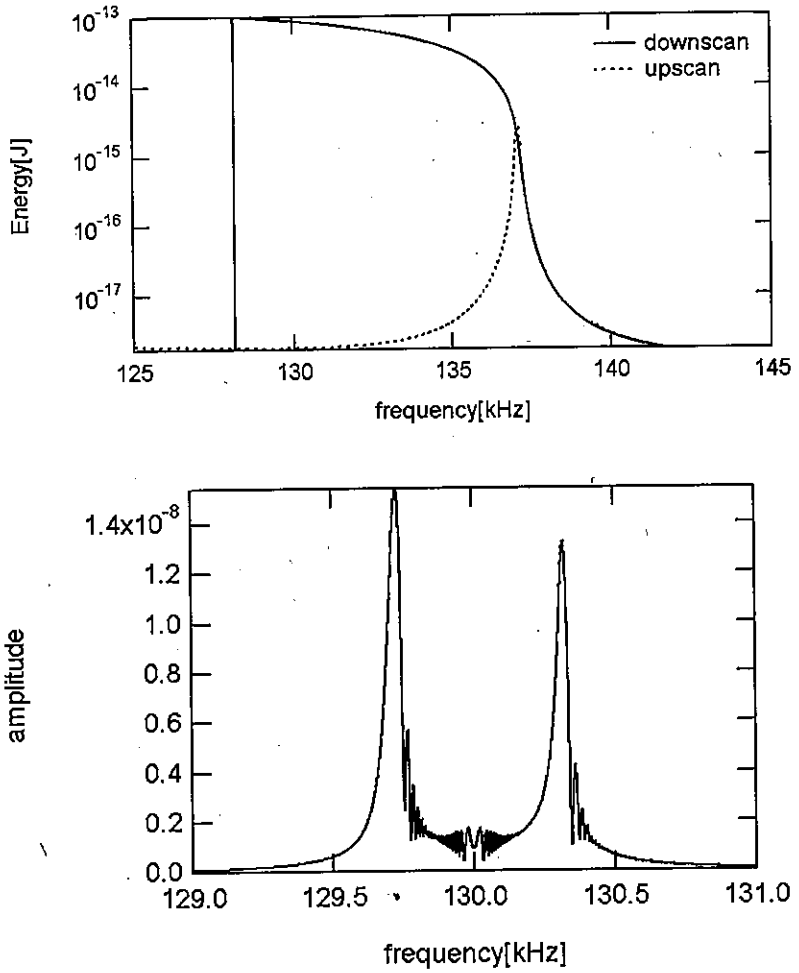


図 14. シミュレーションによる２次の非線形性の場合の主励起周波数に対する応答（上）と、主励起を 130 k Hz に固定した場合の弱い副励起に対する応答（下）。

2.4 位相変調、分散性と非線形性のつり合い

サイドバンド構造という不思議な現象はILMに限らず強制振動で非線形状態に置かれた非線形振動子がもつ共通の性質であると考えられる。現在のところ、そのピーク位置を理論計算で求めることはできていない。サイドバンドの原因は非線形振動周波数と共鳴周波数のずれである。光学では自己位相変調と相互位相変調と呼ばれる現象が知られている。強い光と弱い別の波長の光があるとき、強い光による屈折率変化を強い光の波長（自己位相変調）と弱い光の波長（相互位相変調）で評価すると弱い光の方が大きく屈折率が変化する。[17]力学モデルでの共鳴周波数のずれも、これと同様な現象ではあるが Duffing 振動子のように強制振動の場合、散逸が伴う。一方光ファイバーでの計算の場合、散逸は考慮されておらず、散逸の存在が理論計算を困難にしていると考えられ

る。

ソリトンのメカニズムは分散性と非線形性のつり合いと実空間では理解されている。光ファイバーでは非線形性とは相互位相変調と自己位相変調の差のことである。一方、格子の不純物局在励起や非線形局在励起の場合は分散図で理解されることが多い。ILM 系でもこの、“自己非線形共鳴周波数シフト”と“相互非線形共鳴周波数シフト”と呼ぶべき現象は重要な役割を果たしていると考えられる。図 15 は反強磁性共鳴周波数(uniform mode、$k=0$)とバンドの底（$k\to 0$）のスピン波周波数変化の uniform mode 励起依存性を示している。強く励起されている uniform mode の周波数変化は励起されていないバンドの底（$k\to 0$）のスピン波周波数より小さい。[18] 両者が一致するところで$k=0$モードと$k=\pm k', k'\to 0$モードの間で４波混合が可能になり、いわゆる変調不安定性が起こり、ILM が生成される。

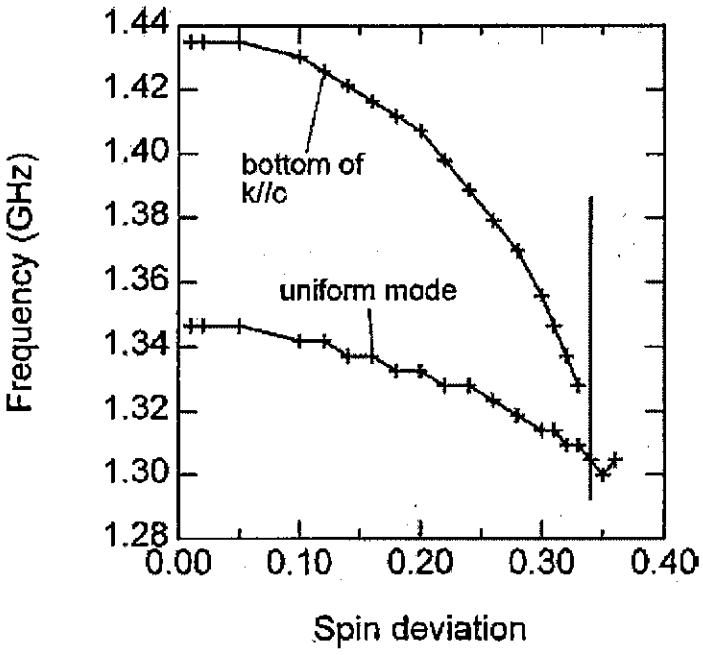


図 15. 反強磁性体でシミュレーションで得られた自己非線形共鳴周波数シフトと相互非線形共鳴周波数シフト。反強磁性共鳴周波数(uniform mode、$k=0$)とバンドの底（$k\to 0$）のスピン波周波数の励起依存性。

また、いったん生成された ILM もこの相互非線形共鳴周波数シフトが自己非線形共鳴周波数シフトよりも大きいことで安定に存在していると考えられる。これは ILM の静止モード、走行モードを問わずそれらを２次元フーリエ変換して得られる分散図上の形が、母体となるバンドに接していることより推測される。たとえば図 16 の静止 ILM では k=0 の成分が一番強く波数 k の絶対値が大

きくなるにつれてフーリエ成分は小さくなる。静止 ILM は不純物状態と同じくバンド状態を集めて作られた波束である。従って分散性は横に水平な直線状態をバンドに戻そうとする性質と理解される。k=0 点より離れるに従って、水平な ILM とバンド周波数は大きくなるので、分散性は低周波側に成分を戻そうとする。ILM を直線に保つためにこれと釣り合う非線形性は、k=0 点より離れるに従って上に大きくならなくてはならない。ところで、相互非線形共鳴周波数シフトは励起の小さいものほど大きくなると考えられる。ILM の場合、k=0 点より離れるに従い振幅が小さくなるので非線形共鳴周波数シフトも大きくなり、まさしく分散性と非線形性のつり合いにより分散図上で直線状態が保たれていると理解できる。走行 ILM についても、分散図での中心が k=0 点から有限の波数で傾いた直線状態とすることで同様に考えられる。[19]

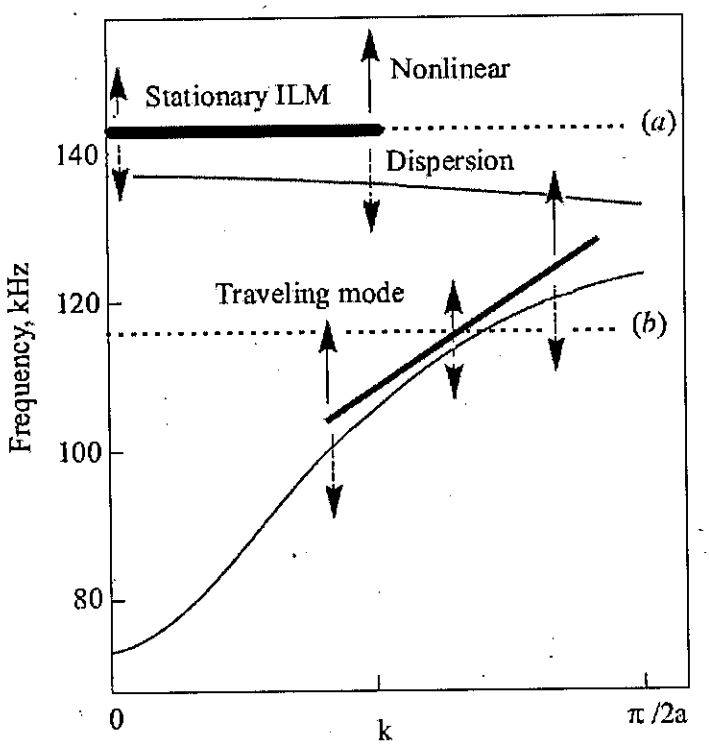


図 16. MEMS 振動子系での分散図上での静止 ILM、走行 ILM とバンドの分散関係.ILM はそれぞれ水平な直線、傾いた直線にマップされ、また母体となるバンドに接している。分散性（下向き矢印）はバンドに接する所は小さくそこから離れるにつれて大きくなる。非線形周波数シフト（上向き矢印）も接する所から離れるに従って大きくなるが、これは ILM の波数成分振幅が減少するため、より強く非線形性を感じるためである。固体での非線形局在励起も同様なメカニズムで生成せれていると予想される。

2.5 THz 領域での４波混合分光装置

マイクロ波での知見を踏まえて、THz 領域での４波混合分光装置について考える。図 17 に示すのはそのイメージ図である。共鳴励起を続けると結晶の温度が上がってしまう。一方緩和過程があるので、ゆっくり観測するためには持続励起する必要がある。わずかな数の ILM を持続励起するならば結晶の温度上昇は防ぐことができる。母体となる格子振動は光学活性であるが ILM をそれと十分周波数分離して観測するためには ILM の振幅が大きい必要がある。結晶全体にエネルギーを与え続けるのではなく、一部の ILM のみ高いエネルギー状態を持続する必要がある。はじめに大強度パルス遠赤外光（ω_1）で瞬間的に励起する。短い時間内に ILM が生成されるがその周波数分布はブロードになる。ω_1 を低く設定しておけば短パルスの時間内に ω_1 に近い ILM はさらに過熱されるので、さらにブロードになる。ILM 持続励起用の中出力 CW 遠赤外光（ω_2）を照射しておけば、ω_2 に近い周波数の ILM は ω_2 と共鳴しエネルギーを受け取り続ける。別の光源 ω_3 を用いて線形吸収分光や非線形分光を行う。これらの周波数の位置関係を図 18 に示す。

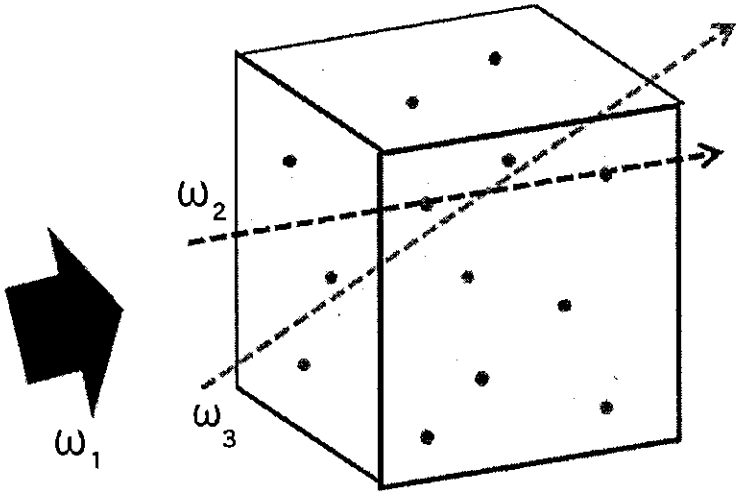


図 17. 丸が ILM を表す。ω_1 ：初期励起用大強度パルス遠赤外光、ω_2 ：ILM 保持 CW 遠赤外光、ω_3 ：非線形分光用テラヘルツ光

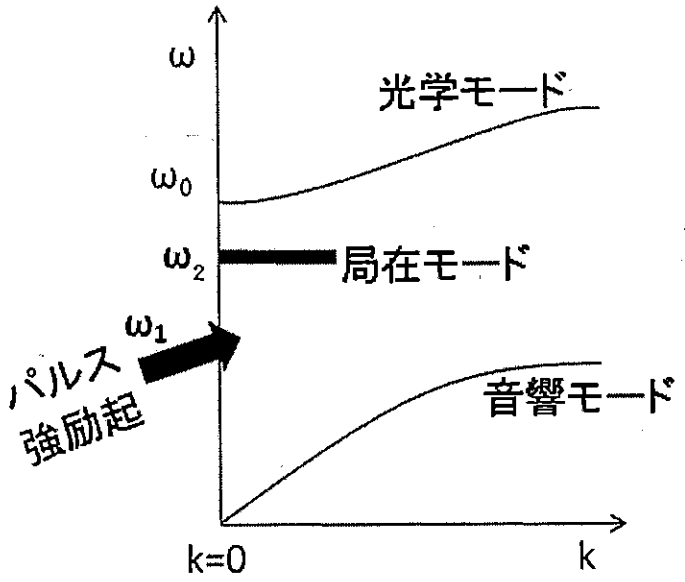


図 18. 分散関係とそれぞれの周波数の関係。分光用の ω_3 は ω_2 近傍で測定を行う。

図 19 に装置の概要を示す。[20] ω_1 用大強度遠赤外パルスレーザーには TEA パルス炭酸ガスレーザーを励起源とする遠赤外（FIR）レーザーを用いる。ILM 持続励起用の ω_2 中出力 CW 遠赤外光源には CW 炭酸ガスレーザー励起の遠赤外（FIR）レーザーを用いる。線形、非線形分光用にはチタンサファイアレーザーを用いていわゆる時間分解テラヘルツ分光を行うことで、スペクトルを得る装置である。これ以外に、テラヘルツの発生、EO 検出装置や CW とパルス炭酸ガスレーザーの波長計測用分光器、FIR レーザー用の波長計測器、光学クライオスタットからなっている。これらの装置群のうち、チタンサファイアレーザーとその励起レーザーは本研究費で購入し、2 台の遠赤外レーザーを自作した。また、TEA 炭酸ガスレーザー、2 台の炭酸ガスレーザー、1 台の遠赤外レーザー、1 台の FTIR、2 台の光学クライオスタットはコーネル大の Sievers 教授から頂いたものである。

マイクロ波での研究で詳しく述べたように、CW の遠赤外光が持続励起用に必要である。これには、周波数は簡単には変えられないものの、安価で CW 光源である炭酸ガスレーザー励起の FIR レーザー（遠赤外レーザーとも呼ばれる分子の振動、回転準位を用いるレーザー）が適している。一様モード（図 18 の ω_0）が温度で変化する物質を選べば、FIR レーザーのように周波数が簡単に変えられなくても不都合はない。一方、4 波混合スペクトルはある程度の周波数の幅

をもって測定したいので、ω_3用にFIRレーザーは不適切である。スペクトルを測定する昔からある方法は、マイケルソン干渉計のようなフーリエ変換分光計を用いる、あるいは波長可変のレーザーを用いるなどの方法がある。ここでは、ω_3の発生、分光用に時間分解方式の超短パルスレーザーを用いる方法を採用した。

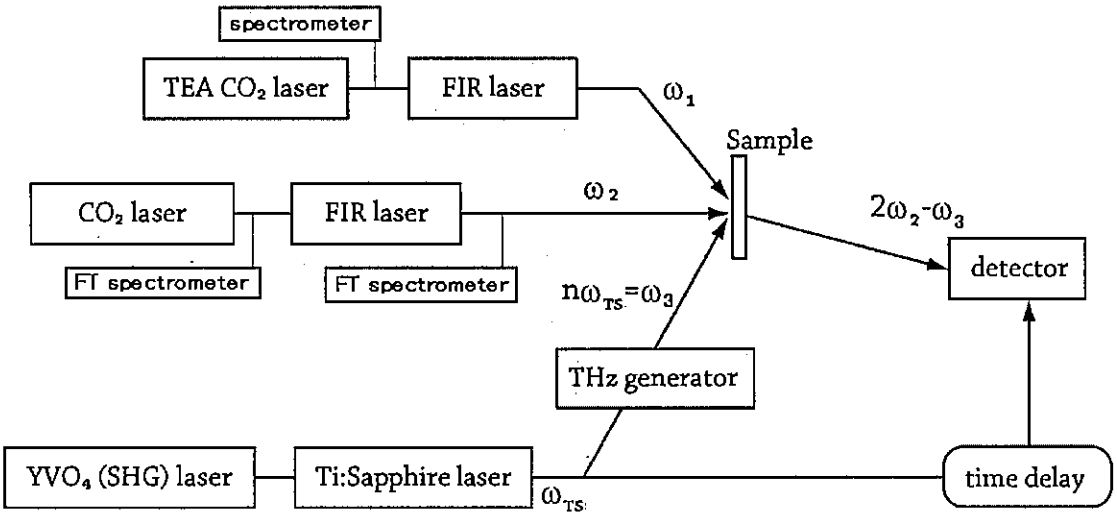


図 19. THz領域非線形4波混合分光装置の概要

2.5.A TEA炭酸ガスレーザー

TEA炭酸ガスレーザーはLUMONICS社TEA-100-2（1985年）を改造したものである。図 20にシステムの簡略図を示す。ガスハンドリングシステムよりガスが供給される。コンデンサーに蓄えられた電荷はギャップスイッチをONにすることで電極間に放電される。整備のため、コンデンサーの交換、放電電極とギャップスイッチの清掃などが必要であった。ヘリウムガスを大量に消費する問題があったので、レーザー管全体を真空に排気できるように整備し、またコンプレッサータンクを用いてガスハンドリングシステムを作った。図 21に作成したガスハンドリング系を示す。この改造によりヘリウム、窒素、炭酸ガスの分圧の制御が容易になった。波長選択はグレーティングにより行われる。遠赤外レーザーはCW用とほぼ同じなので2.5.B節で述べる。約1インチ四方の出力光は複数の平面と曲面の金属（銅）鏡により反射され、ビームを少し絞られて遠赤外レーザーに導かれる。遠赤外レーザーの共鳴器ミラーを外すことで超放射レーザーとしても動作する。

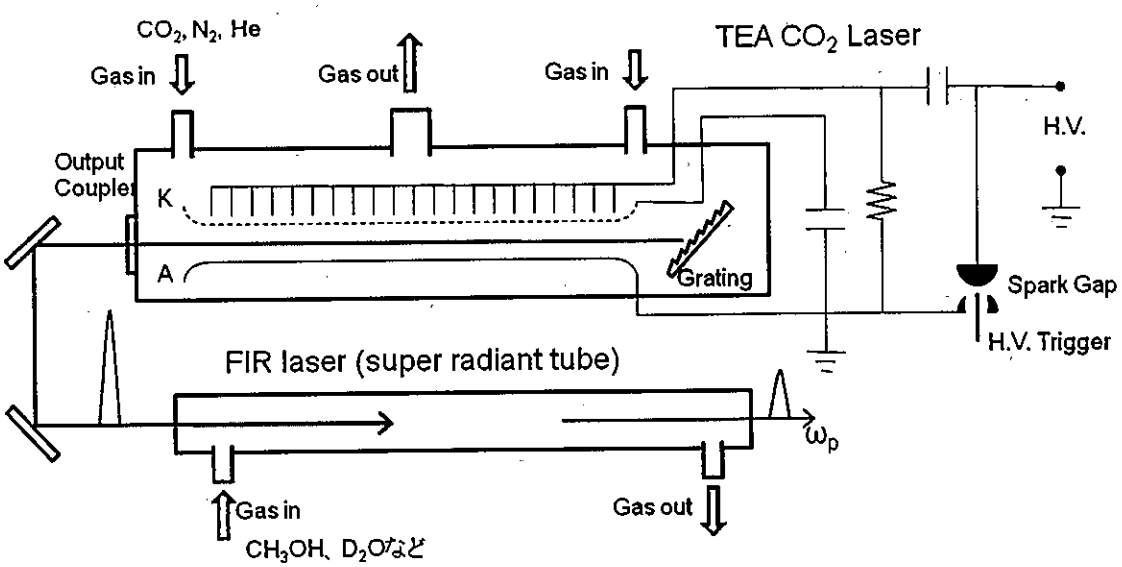


図 20. 改造 TEA 炭酸ガスレーザーと自作遠赤外レーザー系。

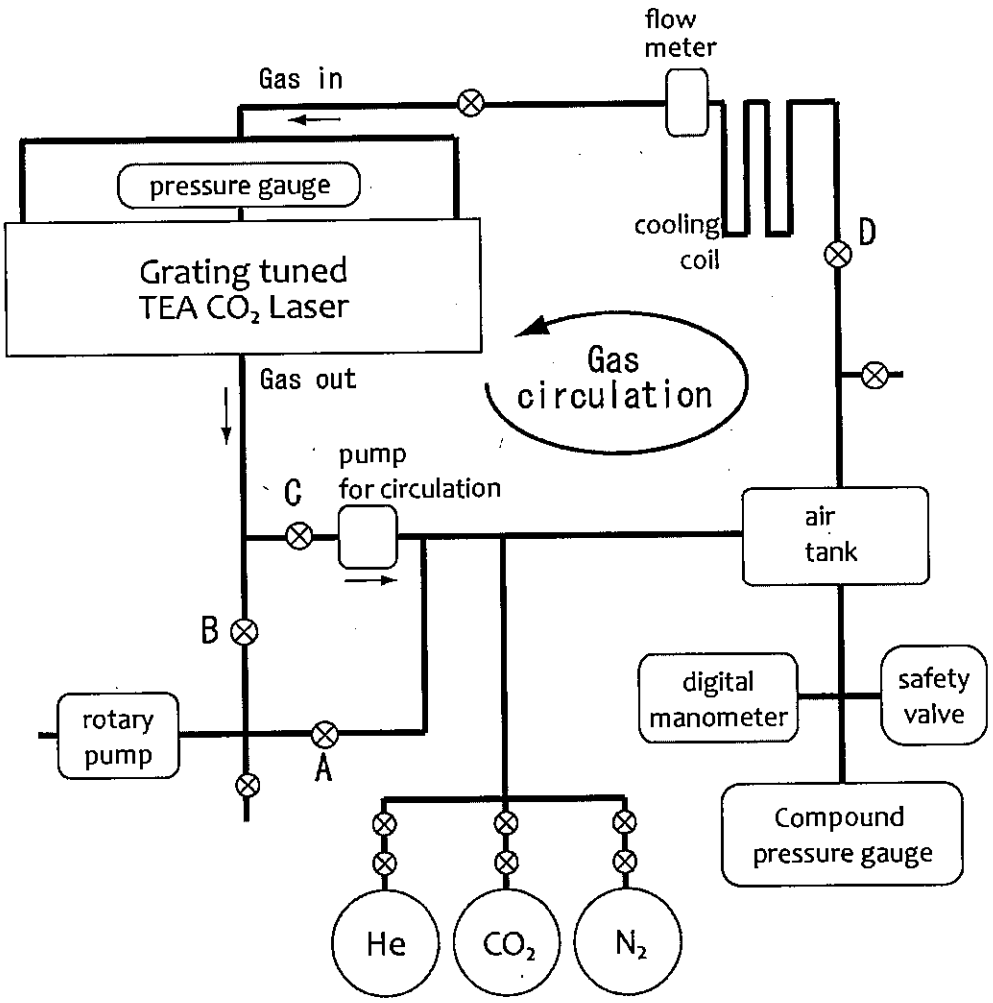


図 21. 自作 TEA 炭酸ガスレーザーのガスハンドリングシステム

TEA パルスレーザーは、管全体にグロー放電が起きない限り発振しない。グロー放電の条件は、予備放電電極と回路、ガス分圧比、ガスの全圧で決まる。今回は予備放電装置には手をつけないでガスパラメーターだけで最適化を行った。図 22 に安定に発振したガスの分圧図を示す。放電の様子を記録するため、図 23 のようにレーザーの上に置いた CCD カメラの垂直同期信号にレーザーと画像取り込み装置を同期させ、ショット毎の放電の様子を撮影する装置を作った。図 24 に示すのがその写真である。下図のように、管全体でグロー放電になるガス条件を見出した。[21] 例えば全圧 400Torr で CO_2 : N_2 : He＝３：２：２０である。

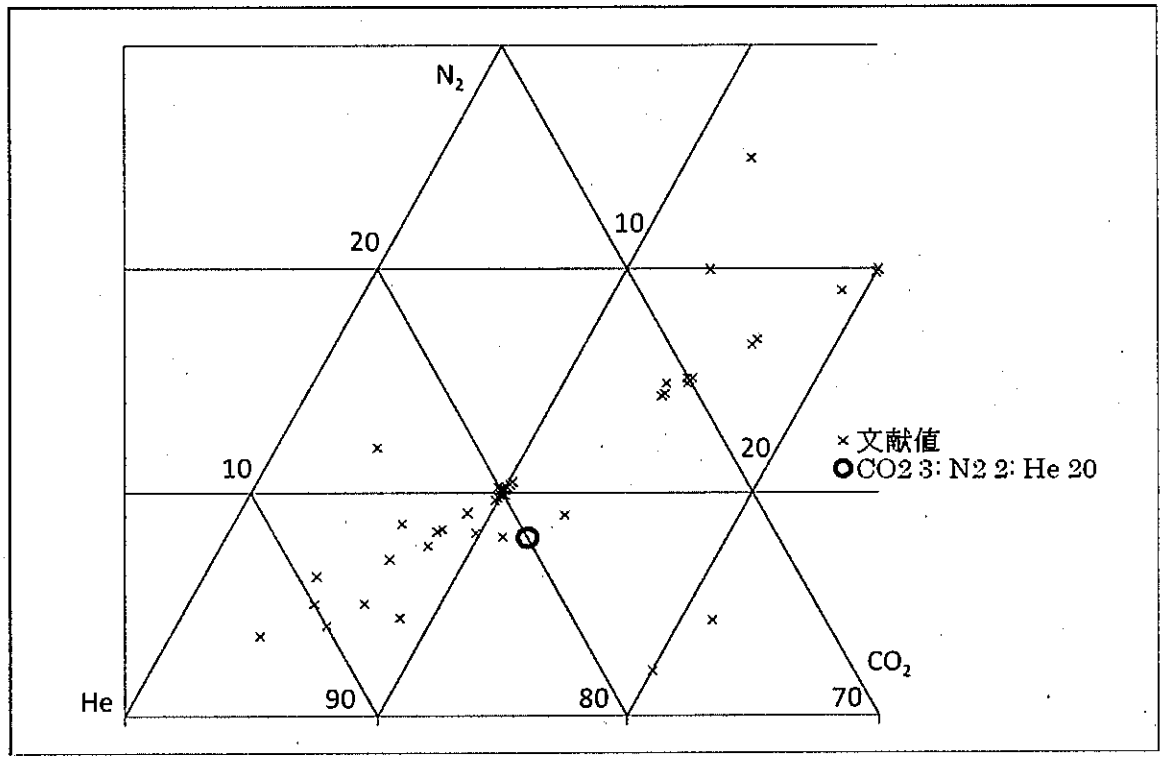


図 22. TEA レーザーのガスの分圧図。数字はガスの分圧を%で表示している。丸の位置で安定に発振した。×印は文献値。

波長選択はグレーティングで行われる。HeNe レーザーを用いてグレーティングの傾きを校正し、マイクロメーターの読みを炭酸ガスレーザーの発振波長に対応させることができた。発振時の波長をグレーティング型の炭酸ガスレーザー波長計（Optical engineering, model 16-A）で感熱紙を検出器として波長測定を行い、対応を確認した。現在、出力鏡に多少ダメージがある状態でも３～４J が出力されている。最適条件で 15J は出るはずである。

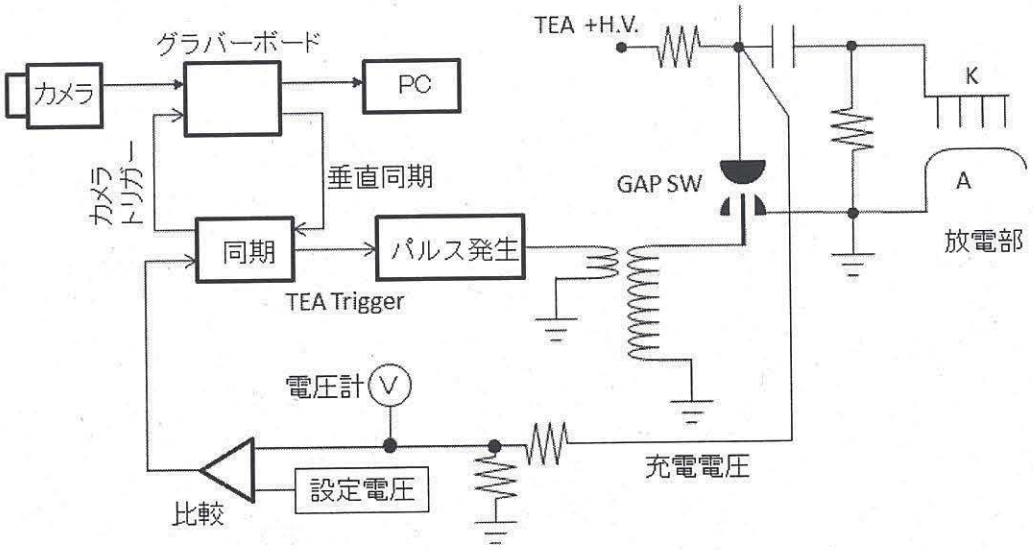


図 23. カメラ同期回路の概略。所定の電圧に充電電圧が達すると、カメラに同期したパルスが発生する。コンピューターには必ず放電時の様子が記録される。

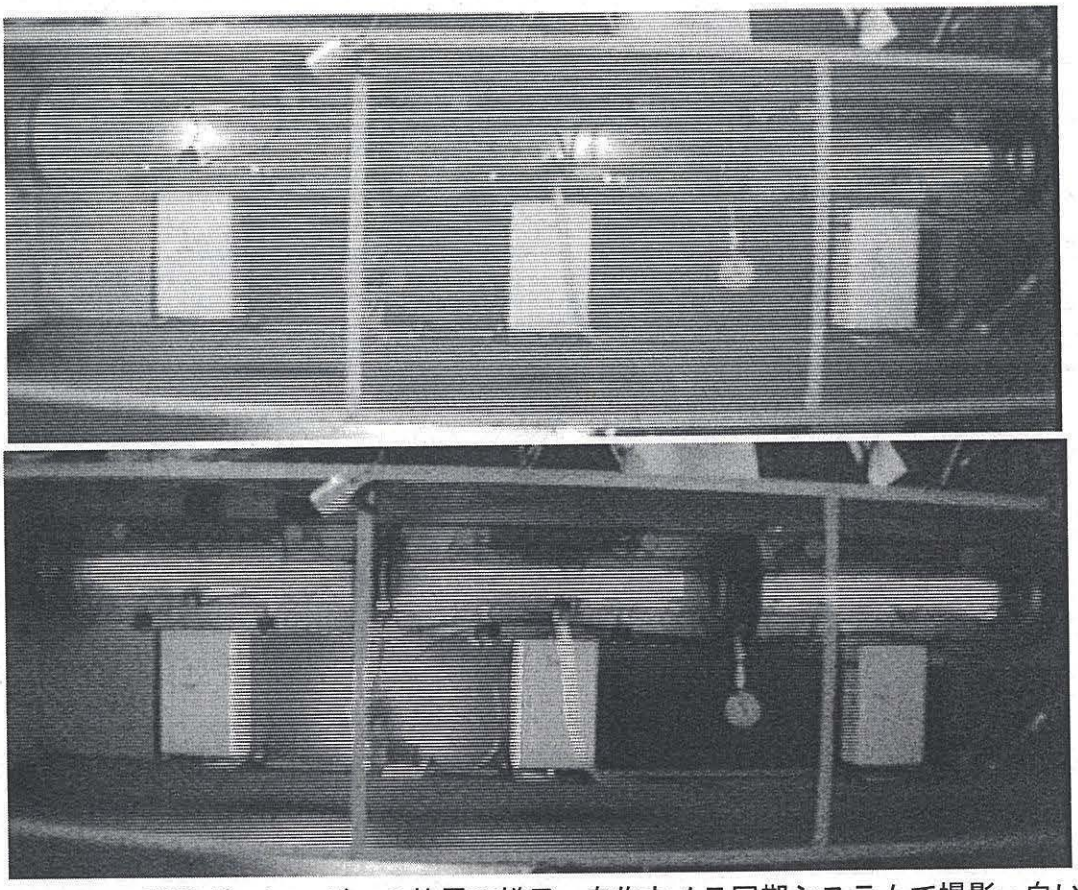


図 24. TEA 炭酸ガスレーザーの放電の様子。自作カメラ同期システムで撮影。白い四角なコンデンサー３つの上にレーザー管が写っている。上の写真ではアーク放電が２か所で起こっている。下の写真では管全体でグロー放電がおこり、このときレーザーが発振する。

2.5.B CW 炭酸ガスレーザーと遠赤外レーザー

CW の炭酸ガスレーザーは Advanced Kinetics 社の MIRL-50-SL(1982 年)と Apollo Lasers 社の model 560(1988 年) を整備した。[22]遠赤外レーザーは Advanced Kinetics 社の FIRWL-S-50-150/D と、自作[23]の２台である。このうち一台の遠赤外レーザーは TEA 炭酸ガスレーザーと組み合わせて用いる。図 25、図 26 にこれらのレーザーの配置の様子を示す。どちらの炭酸ガスレーザーにもマスフローコントローラー（制御器や読み取り器は自作）をとりつけ、安定してガスが流せるようにしてある。Advanced Kinetics 社の炭酸ガスレーザーにはグレーティングのスキャン装置がついていたがこれは修理する必要があった。図 27 にはこの機能を使って測定した１０ミクロン近傍の発振線を示す。

炭酸ガスレーザーの波長測定には小型の FTIR 分光器、堀場製作所 FT-300 を波長計測専用に改造した。検出器を光源の位置に移動し、試料室側よりレーザー光を入射した。外部制御インターフェースとソフトウエアーを作成し、新しいコンピューターで使えるようになった。

遠赤外レーザーは自作した。図 28 にその図を示す。導入されるガスと、励起炭酸ガスレーザーの波長で様々な波長で発振する。[24] メチルアルコール蒸気での遠赤外発振を確認している。

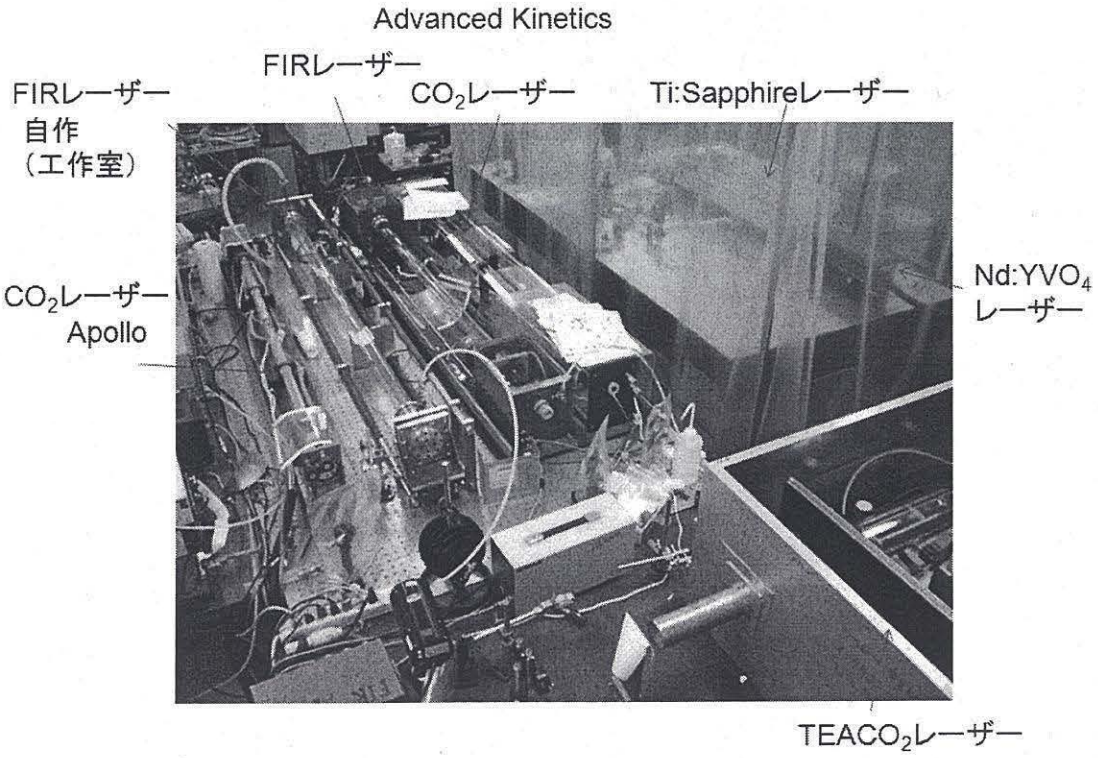


図 25. 炭酸ガスレーザー、遠赤外レーザーなどの写真。

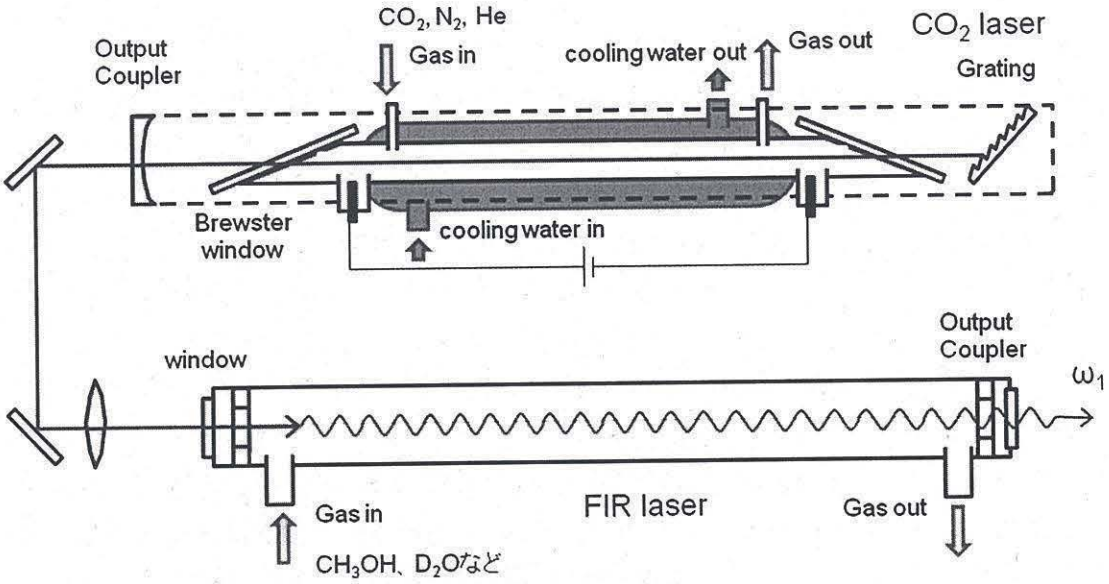


図 26. 炭酸ガスレーザーと自作遠赤外レーザー系。

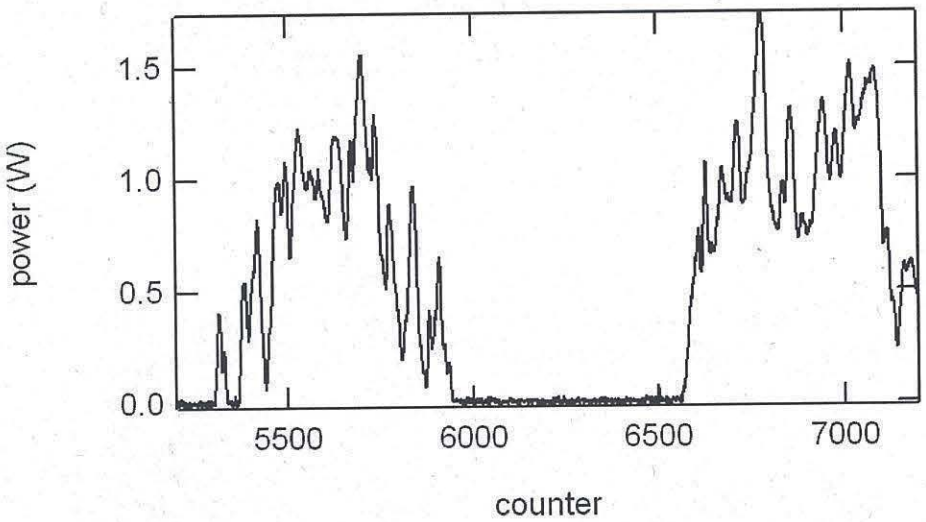


図 27. 炭酸ガスレーザー出力のグレーティング位置依存性。10 ミクロン近傍の発振例。

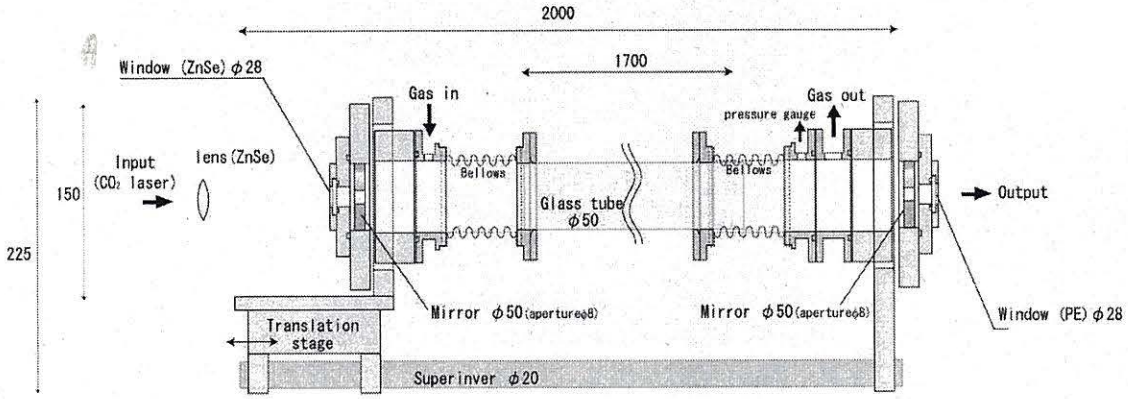


図 28. 自作した FIR レーザー。管はガラスパイプ、真鍮パイプが用いられる。

2.5.C フーリエ分光器

遠赤外での通常の分光やレーザーの波長計用に IBM/Brucker 社の IR/90 分光器（1982 年）を整備した。[24] 光路長測定用 HeNe レーザーの交換、分光器の制御やフィルターなどの回路の修理、FIFO（first-in, first-out）メモリーを用いた外部コンピューターとのインターフェース、制御ソフトウエア、エアベアリング用の乾燥圧縮空気システムなども作った。外部検出器を用いるためのポートや、レーザー光を導入するためのポートも作成した。また、ビームスプリッターについて様々なマイラーなどを試した。遠赤外光検出器に Ge のフォトコンダクター検出器を用意、またゲルマニウム結晶を切断し CP4 エッチング、超音波半田付けで新たに検出器を作成した。（図 29 参照）金属デユワーに液体ヘリウムを汲む必要があるが、入口が狭いので従来からあるトランスファーチューブが使えない問題があった。柔らかい、焼きなましたステンレスパイプを使って２重管構造にして専用のトランスファーチューブを自作した。（図 30 参照）

図 31 に分光器の模式図、図 32 に得られたスペクトルの例を示す。

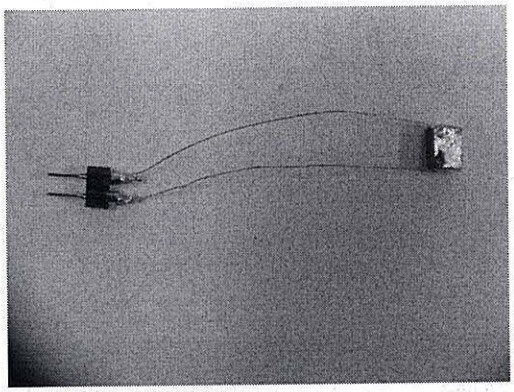
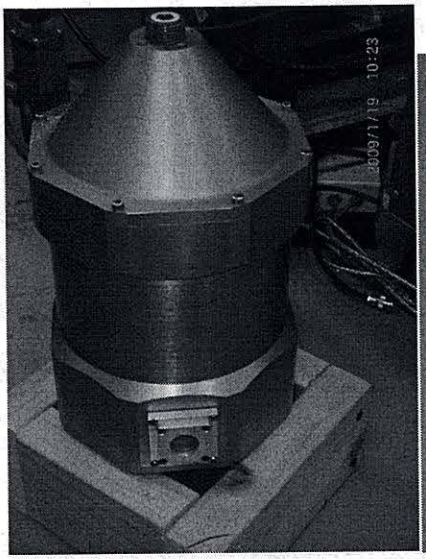


図 29　Ge 検出器の写真。結晶を切り出し、CP4 エッチング液でエッチング後、超音波半田で電極を付けた。



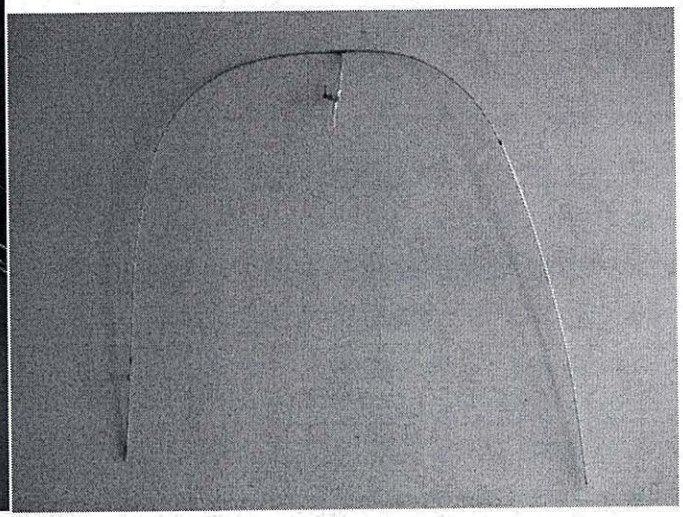


図 30　金属デュワー瓶（左）と、これに液体ヘリウムを汲むために自作したトランスファーチューブ。（右）

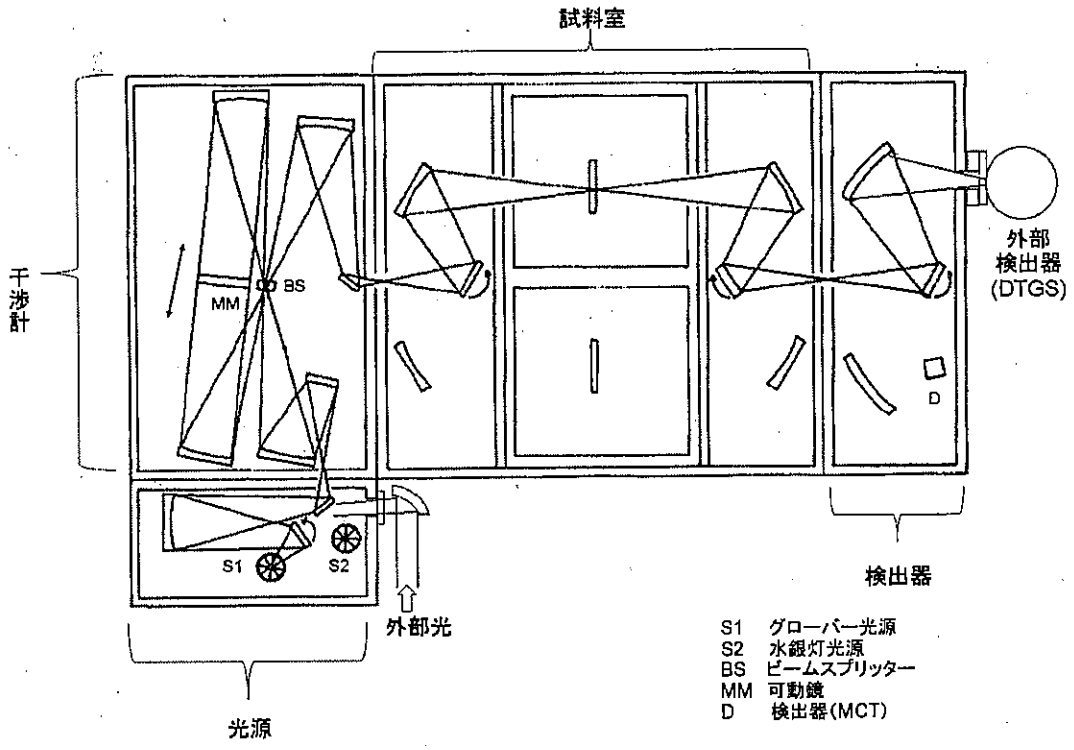


図 31. FTIR 分光器。FIR レーザーの波長測定用に外部光入射ポート、また外部検出器（DTGS やヘリウム冷却検出器）が使えるようにするために出射ポートを作った。

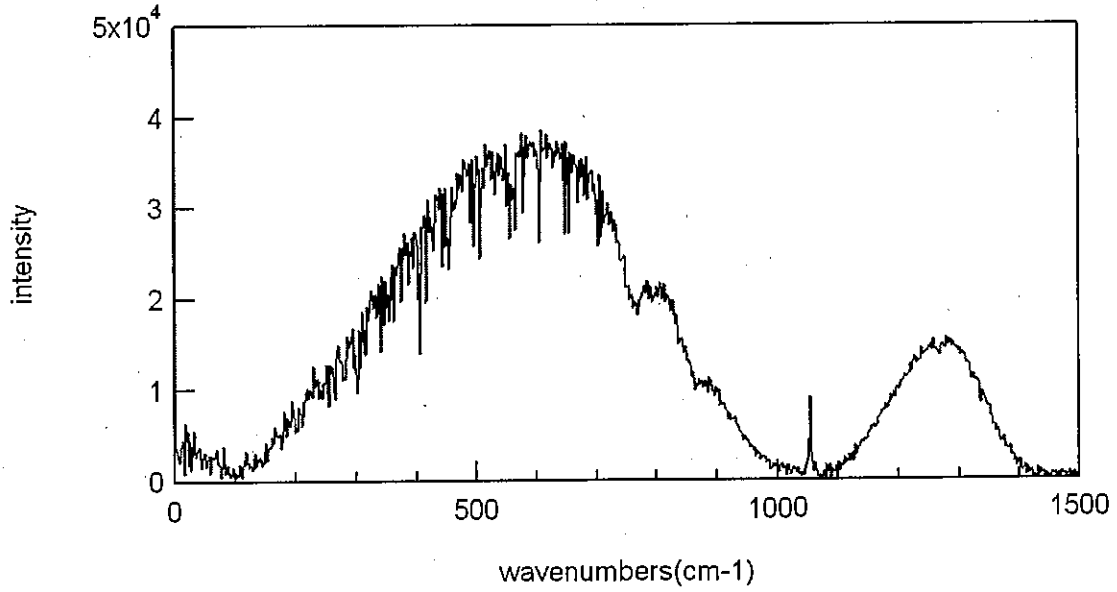


図 32. DTGS 検出器と 5.9 ミクロンマイラービームスプリッターの組み合わせによる分光例。

2.5.D チタンサファイアレーザーと時間分解分光

図 19 に示した光源のうち、ω_1 と ω_2 は波長固定の炭酸ガスレーザー励起の遠赤外レーザーを用いる。ω_3 についてはスペクトルを得たいのでブロードな分光が可能な方法、すなわちチタンサファイア超短パルスレーザーを利用する時間分解分光法を採用した。

チタンサファイアレーザーはコヒーレント社 Verdi-6 で励起される CDP 社 TISSA-50 である。これはキットで、後の議論にあるようにパルスの繰り返し周波数を可変するためには都合がよい。図 33 に TISSA-50 の模式図を示す。出力鏡と折り返しのミラーは、超音波モーターで微調整できるように改造された。これにより容易に調整ができるようになった。図 34、図 35 に写真と制御回路を載せる。これらの改造により 380mW の出力を得ている。

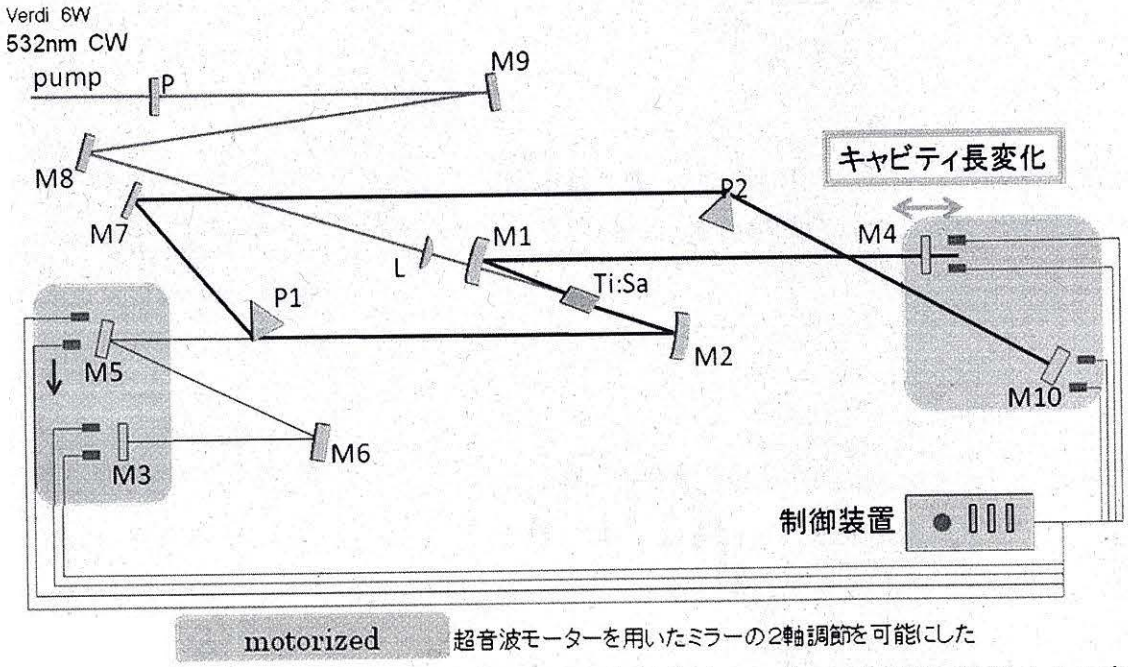


図 33. CDP 社 TISSA-50 とその改造。ミラーを超音波モーターで制御できるように制御装置を自作した。

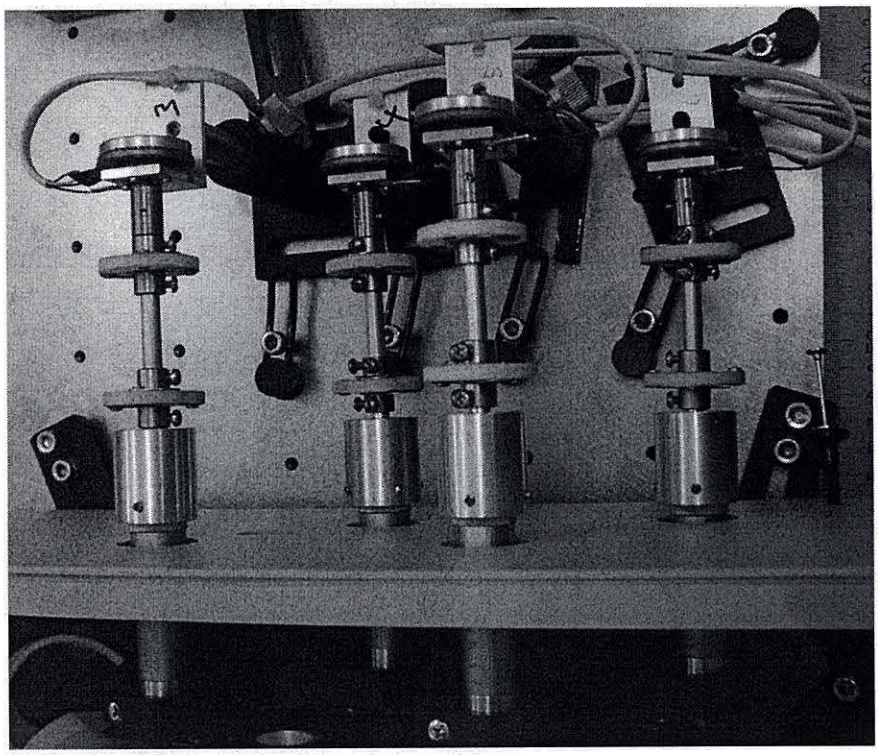


図 34. 超音波モーターとミラーマウントの接続。

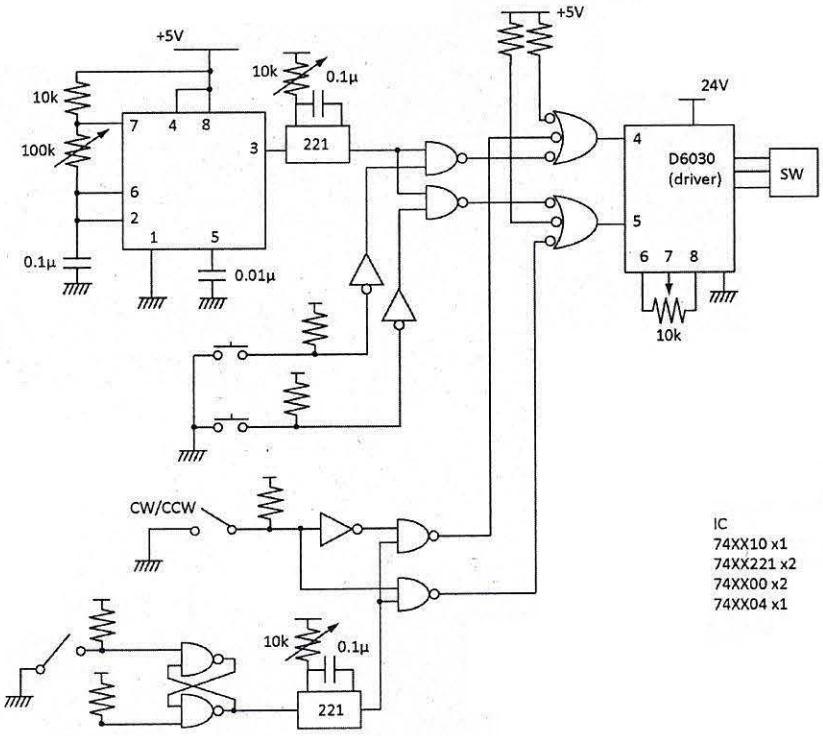


図 35. 超音波モーターのコントローラー回路

チタンサファイアレーザーを用いる時間分光装置については線形吸収分光と、非線形４波混合分光の２つの分光が考えられた。Auston に始まる通常の時間分解 THz 分光については、解説があるので、ここでは詳しく述べない。[25, 26] 図 36 に線形分光の模式図を示す。チタンサファイアレーザーの光はビームスプリッターで２つに分けられる。１つは永久磁石による磁場中におかれた InAs 基板に照射され、そこで THz 光が発生される。[27] 図 37 に THz 発生部を示す。発生した THz 光は試料を透過、あるいは反射（図は透過分光を示す）し、EO 検出器に入る。EO 検出器では時間遅延されたもう一方のチタンサファイア光が、THz 波の電場による複屈折の変化を受けて偏光状態が変化する。これをフォトダイオードで検出する。時間遅延の関数として THz 波の電場を得て、フーリエ変換することでスペクトルが得られる。非線形４波混合分光に関しては、次節で述べる。

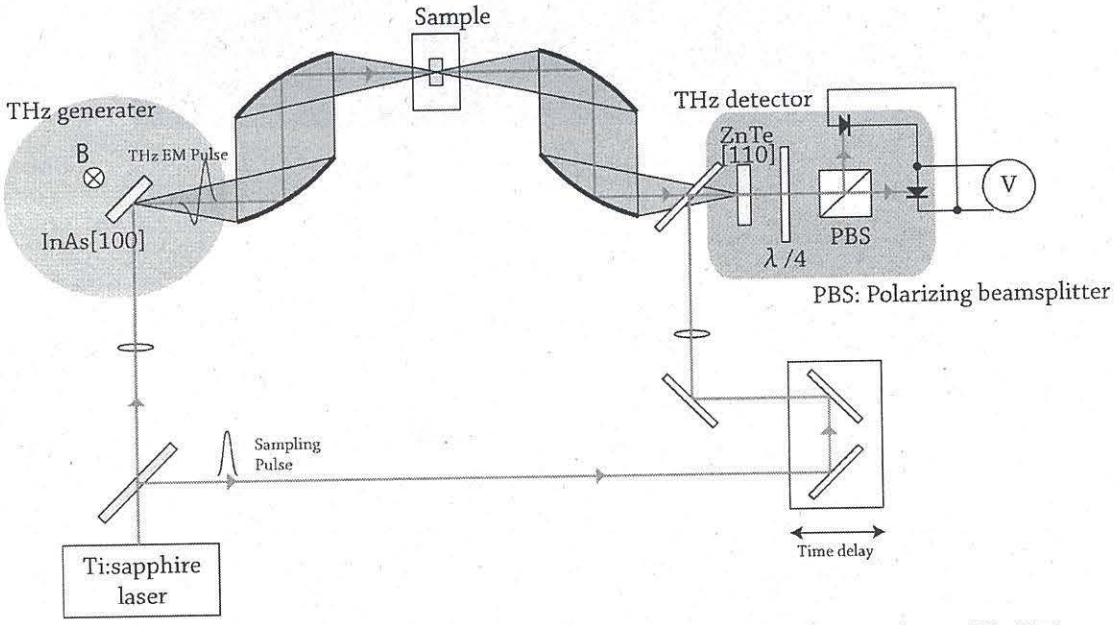


図 36. チタンサファイアレーザーを用いた、時間分解透過測定装置の模式図。

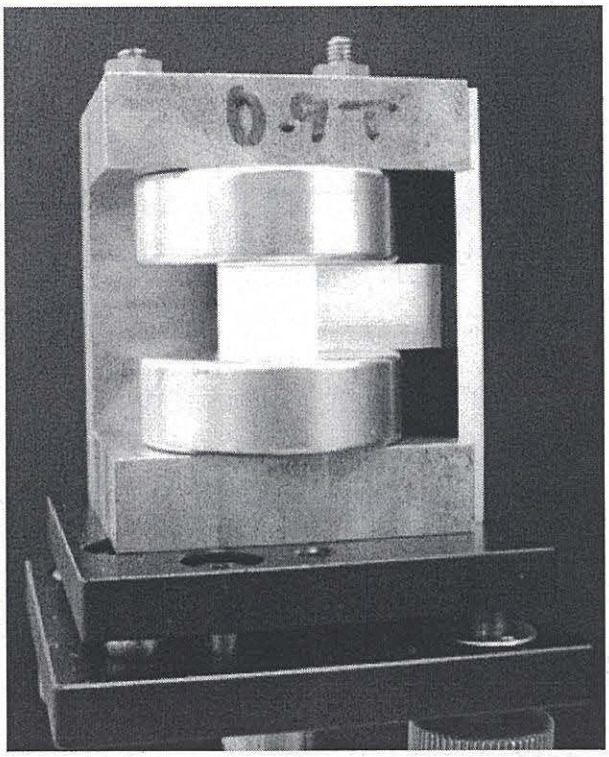


図 37. InAs　THz 光発生部。ガウスメータで磁場を測定したところ、0.9T であった。

2.6 同期の問題

図 38 に時間分解分光法を応用した非線形 4 波混合測定の模式図を示す。非線形 4 波混合分光について、式を用いてここで詳しく述べることにする。光強度 I(t)のパルスをビームスプリッターで 2 つに分割する。検出器用の光には時間遅延 τ をつける。パルスが THz 発生器に入射すると、THz 電場 $E_T(t)$が放射される。$E_T(t)$と FIR レーザーからの電場 $E_{FIR}(t)$が試料で重なる。試料の 3 次の非線形性（あるいは 2 次の非線形の 2 回のプロセス）により 4 波混合光が生じる。4 波混合光の電場を $E^{(3)}(t)$とする。検出器用パルスと同時に検出器に入った $E^{(3)}(t)$の値のみが検出される。検出用パルスにつけた時間遅延によって $E^{(3)}(t)$の時間変化を知ることができる。出力電圧は、$E^{(3)}(t)\times I(t-\tau)$ のパルス毎の長時間平均である。

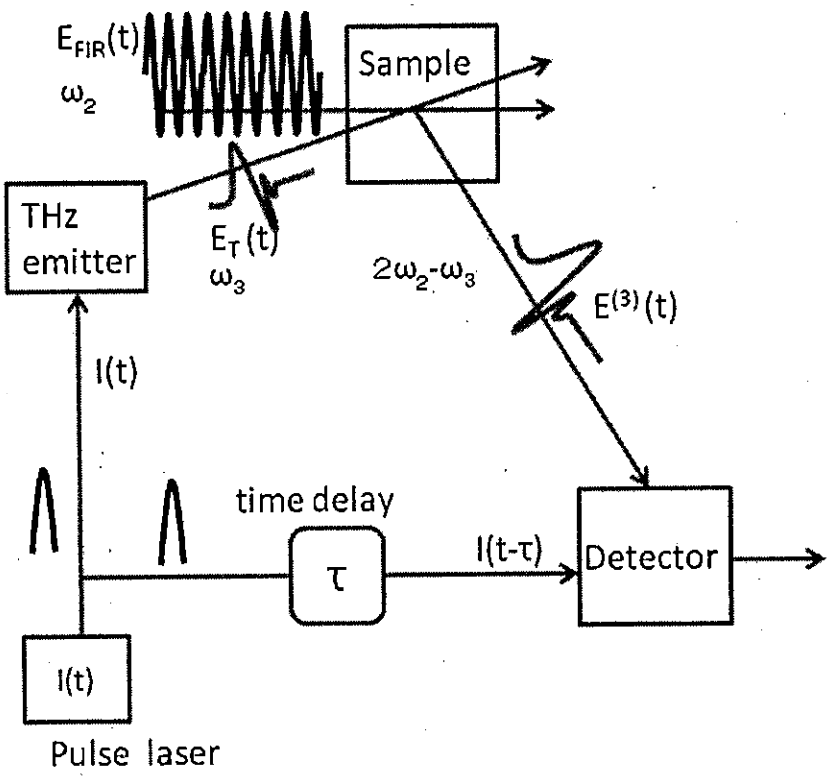


図 38. 非線形 4 波混合分光の模式図

通常の時間分解分光の場合、THz 光を発生したパルス光と、検出に用いるパルス光は同一の光パルスであるので、結果は一種の自己相関関数となっている。すなわちパルス毎に同じ出力が期待される。ところが上述の非線形分光の場合、原因となるパルス光とは異なる、FIR レーザーの光が関係している。このような場合でも通常の時間分解分光同様にシグナルが得られるのであろうか。

繰り返しパルスによって発生した THz 光と励起保持用遠赤外光によって 4 波混合光を生じる。チタンサファイアレーザーのパルス強度は

$$I(t-\tau)=\sum_{n=1}^{\infty}\frac{1}{2}\left(I_n \exp\left[-in\omega_{TS}(t-\tau)\right]+c.c.\right) \qquad (9)$$

とかける。ここで ω_{TS} はチタンサファイアパルスレーザーの繰り返し周波数である。THz 光の電場の周波数成分は、これが ω_{TS} で繰り返すことから ω_{TS} の整数倍の周波数成分を持つ。すなわち $\omega_3 = n\omega_{TS}$ と考えられる。4 波混合光の電場 $E^{(3)}$ を式で表すと

$$E^{(3)}(t)\propto\sum_{n=1}^{\infty}\left(\chi^{(3)}(\omega_2,\omega_2,-n\omega_{TS})\exp\left[-i(2\omega_2-n\omega_{TS})t\right]+c.c.\right) \qquad (10)$$

であり、3 次の非線形応答スペクトル $\chi^{(3)}$ を含む。遅延光パルス $I(t-\tau)$ と同時

に入射した4波混合光の電場だけが検出器で検出される。$E^{(3)}$と光パルス強度の積の時間平均が検出器電圧になるので、

$$V(\tau) \propto \sum_{m,n} \overline{E_n^{(3)}(t) \times I_m(t-\tau)} \qquad (11)$$

と書き表せる。式（9)、(10）を代入して

$$V(\tau) \propto \overline{\left(\chi^{(3)}(\omega_2,\omega_2,-n\omega_{TS})\exp\left[-i(2\omega_2-n\omega_{TS})t\right]+c.c.\right)\times\left(\exp\left[-im\omega_{TS}(t-\tau)\right]+c.c.\right)}$$

(12)

上式で時間平均値が0でないためには遠赤外レーザーの周波数がTi:Sapphireレーザーの繰り返し周波数の整数倍にならなくてはならない。すなわち

$$2\omega_2 = (n+m)\omega_{TS} = N\omega_{TS} \qquad (13)$$

ここで、ω_2はFIRレーザー周波数であるので目標とするスペクトル域の近傍である。この近傍のスペクトルのみ観測されれば良く、また$\omega_3 = n\omega_{TS}$なので、n, mはほぼ同じ数である。この条件がみたされるとき、

$$\begin{aligned} V(\tau) &\propto \overline{\left(\chi^{(3)}(\omega_2,\omega_2,-n\omega_{TS})\exp\left[-i(m\omega_{TS})t\right]+c.c.\right)\times\left(\exp\left[-im\omega_{TS}(t-\tau)\right]+c.c.\right)} \\ &= \overline{\left(\chi^{(3)}(\omega_2,\omega_2,-n\omega_{TS})\exp\left[-i(2mt-m\tau)\omega_{TS}\right]+c.c.\right)} \\ &\quad + \overline{\left(\chi^{(3)}(\omega_2,\omega_2,-n\omega_{TS})\exp\left[i(m\omega_{TS})\tau\right]+c.c.\right)} \\ &= \left(\chi^{(3)}(\omega_2,\omega_2,-n\omega_{TS})\exp\left[i(m\omega_{TS})\tau\right]+c.c.\right) \end{aligned}$$

(14)

出力電圧をフーリエ変換すると

$$V(\omega_m = 2\omega_2 - n\omega_{TS}) \propto \chi^{(3)}(\omega_2,\omega_2,-n\omega_{TS}) \qquad (15)$$

となり、非線形応答スペクトルが含まれた値が求められる。したがって、非線形分光の場合でも第2のレーザー（この場合はFIRレーザー）の周波数をパルスレーザーの繰り返し周波数の整数倍に同期させれば可能であることがわかる。

このため、チタンサファイアレーザーの共振器長を変化させて繰り返し周波数を調節する。レーザーのパルスの繰り返し周波数は、共振器長をLとすると

$$\Delta\nu = \frac{c}{2L} \fallingdotseq 80\times10^6[\mathrm{Hz}] \qquad (16)$$

である。FIRレーザーの波数は100cm^{-1}（3THz）近傍を目指している。パ

ルスレーザーの繰り返し周波数 80MHz の整数倍が 3THz となるとき、その次数は $N=37500$ である。

共振器長を伸ばしたときの繰り返し周波数を ν_+ 共振器長を L_+ とすると

$$\nu_+ = \frac{c}{2L_+} \qquad (17)$$

これが

$$3\times10^{12}[Hz] = (N+1)\nu_+ = (N+1)\frac{c}{2L_+} \qquad (18)$$

をみたし、同様に、共振器長を縮めた時の繰り返し周波数を ν_- 共振器長を L_- として

$$\nu_- = \frac{c}{2L_-} \qquad (19)$$

$$3\times10^{12}[Hz] = (N-1)\nu_- = (N-1)\frac{c}{2L_-} \qquad (20)$$

両者のキャビティ長の差は約 100μm であるので少なくとも共振器長を 100μm 変化させることができれば、チタンサファイアレーザーと FIR レーザーとの同期が可能であるといえる。チタンサファイアレーザーの共振器を改造すれば十分実現可能であると思われる。

本研究では、チタンサファイアレーザーの励起レーザーの故障が重なり、同期を実現し４波混合装置を完成させるには至っていない。

3　まとめと今後の計画

3.1　まとめ

反強磁性スピン系や MEMS 振動子系では３次の非線形性による非線形局在励起が観測されている。非線形４波混合スペクトルの観測がそれらの研究では強力な道具となった。

非線形４波混合スペクトルに現れるサイドバンド構造は、相互非線形共鳴周波数シフトが自己非線形共鳴周波数シフトよりも大きいという効果によるものと推測した。また、同じ効果が非線形局在励起の形状を保つ働きをしていることもほぼ結論できた。これは非線形性と分散性のつり合いという、ソリトンと同じメカニズムである。ここではソリトンで行われるような実空間での解釈ではなく、分散図上、すなわち波数空間で理解できることを示した。

固体の非線形性は反強磁性スピン系やMEMS振動子系でみられた３次の非線形性ではなく、２次の非線形性が強く出る可能性がある。２次の非線形性でも非線形局在励起が生じることを電気格子で確認した。また、その場合でもサイドバンド構造が現れることを確認した。

固体の格子振動に基づく非線形局在励起の研究のため、非線形４波混合装置の作成を行った。TEA レーザー励起 FIR レーザー、CW 炭酸ガスレーザー励起 FIR レーザー、チタンサファイアレーザー、フーリエ分光器などの整備、改造、改良を行った。TEA レーザー、CW 炭酸ガスレーザー、FIR レーザー、チタンサファイアレーザー、フーリエ分光器は動作するようになった。

理論的に THz４波混合分光について考察した結果、出力の時間平均をとって値を得るためには FIR レーザーの周波数がチタンサファイアレーザーの繰り返し周波数の整数倍にならなくてはならないことがわかった。それを実現するためには、チタンサファイアレーザーの共振器長を変化させて繰り返し周波数を調節することが必要である。実際の共振器長変化を計算すると、100μm となり、十分実現可能であることがわかる。

本研究では、チタンサファイアレーザーの励起レーザーの故障が重なり、同期を実現し４波混合装置を完成させるには至っていない。しかしながら装置が完成し、固体の非線形局在励起の４波混合スペクトルが測定されることが期待される。誘電体の相転移現象などの研究が非線形局在励起の視点から理解されると期待される。

3.2　最近の固体における非線形局在励起研究の発展

固体の非線形局在励起について最近進展があった。ひとつは NaI の中性子実

験、もう一つは反強磁性体$(C_2H_5NH_3)_2CuCl_4$についてである。本研究とかかわりがあると思われるので、ここで述べる。

3.2.A NaIについて

NaIは光学モードフォノンと音響モードフォノンの間にギャップが開いていて、この間にゾーン境界を中心に非線形局在励起ができると期待された。[28] 最近、Manleyらによってこの物質の中性子非弾性散乱測定がゾーン境界を中心に測定された。[29] その結果、融点の0.6倍の温度にて、熱的に活性されたILMによる散乱が観測された。しかしながらその周波数分布はシミュレーションから期待されたようなブロードなものではなく、比較的シャープなピークを持っていた。

彼らはこの結果を配置エントロピーの効果と考えている。もともと固体のILMは生成すると2次の非線形性のために局所的な歪を伴う。この局所歪はエネルギー的に高いが不純物のようにエントロピーの増加をもたらす。自由度が非常に大きい実際の固体では、相転移論のように内部エネルギーとエントロピーの効果にILMも支配される。相転移論では数個のユニットセルのみ独立に考慮すれば後は繰り返しなので十分である。一方ILMでは格子全体にILMが不規則に散らばる違いがある。

NaIでのスペクトルがシャープになる理由が、シミュレーションでは考慮されていなかった非常に大きな自由度とエントロピーによるならば本研究の誘電体での非線形局在励起にも共通する現象かもしれない。ただし、本研究はゾーン中心、NaIではゾーン境界という違いがある。

3.2.B 反強磁性体$(C_2H_5NH_3)_2CuCl_4$について

NaIで熱ILMの周波数スペクトルがシミュレーションによるよりもシャープになり、しかもNaIではバンドの底とILMの区別がある程度ついている。このことは、ゾーン中心でILMが期待される誘電体でも同様かもしれない。反強磁性体$(C_2H_5NH_3)_2CuCl_4$について、詳細に調べてみた。[30]

図３０に試料形状の異なる４種の試料の吸収スペクトルの励起後時間変化を示す。左図(a)では反強磁性共鳴に時間スケールT_1で帰ってゆく吸収の低周波側にそれと明らかに区別される吸収のピークが見える。これは時間経過とともに消えてゆく。ほかの形状の試料でもこのピークは見えるが、右図上のようにピーク位置の規則性ははっきりしない。反強磁性共鳴に帰ってゆくピークを、元の反強磁性共鳴の位置（縦の実線）と一致するようにスペクトルをシフトさせると、この新たな吸収のピーク位置は試料形状に依存せず同じ位置にくる。

反強磁性体$(C_2H_5NH_3)_2CuCl_4$では、隣り合うスピン間に働く相互作用がスピ

ン波バンドを作る主な原因である。しかしながらダイポール・ダイポール相互作用は無視できず、バンドの底近傍では縦波モードと横波モードに周波数の違いをもたらす。k=0 では試料形状依存性の原因となる。（スピン波のバンドには試料形状は変化をもたらさない。）今回の場合、縦波モードのほうが周波数が高い。また反強磁性共鳴周波数はこの２つのモードの底の周波数の間にくる。真のバンドの底は横波モードの底で、棒状試料の反強磁性共鳴周波数に近い。図 39 右下の試料１の方が棒状に近く、縦実線であらわされた反強磁性共鳴周波数が低い。パルス励起で新たに作られた ILM 状態のピークが、試料によらず横波バンドの底近傍、あるいは底より低周波側にあることは、ILM が真のギャップに存在しているのでライフタイムが長く結果として状態密度が増加した結果かもしれない。

以上の反強磁性体での結果は、格子振動を由来とする誘電体の ILM に無関係ではない。誘電体などの正負の電荷をもつ原子からなる固体には必ずダイポール・ダイポール相互作用の効果があり、しかもそれは磁性体よりも大きくバンドの形状を支配する第二の要因である。NaI でもゾーン境界で下から TA,LA,TO,LO と音響、光学モード両方共に縦波、横波に周波数差がある。変異型強誘電体の TO ソフトモード周波数がゾーン中心で下がってくるのもダイポール・ダイポール相互作用による。生成された ILM が横波バンドの底近傍に蓄積し、シミュレーションよりはっきりしたピークを形作るのは誘電体の ILM にも共通しているかもしれない。

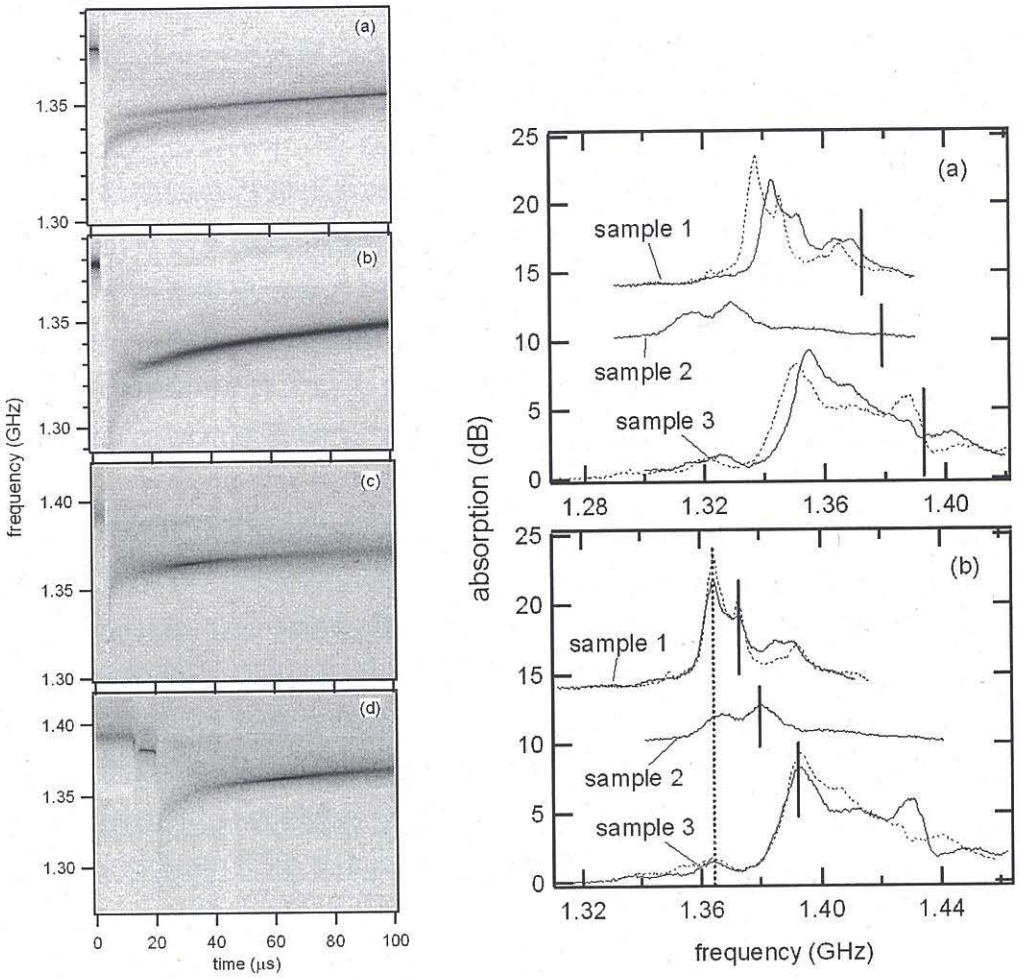


図 39. 反強磁性体$(C_2H_5NH_3)_2CuCl_4$の吸収の時間変化の試料形状依存性。
左：パルス励起後の吸収変化。右上：励起後数マイクロ秒後の吸収。縦の実線は反強磁性共鳴周波数。右下：吸収スペクトルの構造のうち、長時間後に元の反強磁性共鳴周波数に帰ってゆくピークが反強磁性共鳴周波数に合うようにスペクトルをシフトさせる。すると、どの場合でも同じ位置にパルス励起でできた新たな吸収ピークが来る。

3.3 今後の計画

3.2 節に述べたように、固体の非線形局在励起の研究は反強磁性体、誘電体、アルカリハライドなどに共通してダイポール・ダイポール相互作用の問題が無視できない。反強磁性体ではダイポール・ダイポール相互作用によるスピン波バンド構造の変化（マニフォールド）は緩和過程と密接に関連している。[31] また、MEMS 系やシミュレーションなどの少数自由度と多数自由度の違いの問題も見えつつあるように思われる。

固体における非線形局在励起の研究をさらに深めるためには非線形テラヘルツ 4 波混合装置を仕上げ、実際に測定を行いたい。そのため、チタンサファイアレーザーの励起レーザーを修理する、さらにレーザーシステムを整備する、FIR レーザーとチタンサファイアレーザーとの同期をとる、光学クライオスタットを整備する計画である。同期の問題については FIR レーザー光の一部を EO サンプリングし、フィードバックすることで可能であると考えられる。

参考文献

[1] D. K. Campbell, S. Flach, and Y. S. Kivshar, "Localizing energy through nonlinearity and discreteness", Physics Today **57**, 43 (2004).

[2] Sergej Flach and Andrey V. Gorbach, "Discrete breathers - Advances in theory and applications", Physics Reports **467**, 1-116 (2008).

[3] A.J. Sievers and S. Takeno, "Intrinsic localized modes in anharmonic crystals", Phys. Rev. Lett. **61**, 970 (1988).

[4] Falk Lederer, George I. Stegeman, Demetri N. Christodoulides, Gaetano Assanto, Moti Segev and Yaron Silberberg, "Discrete solitons in optics", Physics Reports **463**, 1-126 (2008).

[5] E. Trías, J. J. Mazo, and T. P. Orlando, "Discrete Breathers in Nonlinear Lattices: Experimental Detection in a Josephson Array", Phys. Rev. Lett. **84**, 741(2000).

[6] P. Binder, D. Abraimov, A.V. Ustinov, S. Flach, and Y. Zolotaryuk, "Observation of Breathers in Josephson Ladders", Phys. Rev. Lett. **84**, 745(2000).

[7] M. Sato, B. E. Hubbard, and A. J. Sievers, "*Colloquium*: Nonlinear energy localization and its manipulation in micromechanical oscillator arrays", Reviews of Modern Physics **78**, pp.137-157 (2006).

[8] B. I. Swanson, J. A. Brozik, S. P. Love, G. F. Strouse, A. P. Shreve, A. R. Bishop, W.-Z. Wang, and M. I. Salkola, "Observation of Intrinsically Localized Modes in a Discrete Low-Dimensional Material", Phys. Rev. Lett. **82**, 3288(99).

[9] M. Sato and A. J. Sievers, "Direct observation of the discrete character of intrinsic localized modes in an antiferromagnet", Nature **432**, 486 (2004).

[10] M. Sato and A. J. Sievers, "Counting discrete emission steps from intrinsic localized modes in a quasi-one-dimensional antiferromagnetic lattice", Physical Review **B71**, 214306 (pp.1-14) (2005).

[11] M. E. Manley, M. Yethiraj, H. Sinn, H. M. Volz, J. C. Lashley, W. L. Hults, G. H. Lander, and J. L. Smith, "Formation of a New Dynamical Mode in alpha-Uranium Observed by Inelastic X-Ray and Neutron Scattering" , Phys. Rev. Lett. **96**, 125501 (2006).

[12] A. Bussmann-Holder, A. R. Bishop and T. Egami, "Relaxor ferroelectrics and intrinsic inhomogeneity", Europhysics Letters **71**, 249(2005).

[13] R. Lai, A.J. Sievers, "Nonlinear Nanoscale Localization of Magnetic Excitations in Atomic Lattices", Physics Reports **314**, 147 (1999) .

[14] B. E. Hubbard, Ph.D. thesis, "Experimental observation and manipulation of

intrinsic localized modes in micromechanical cantilever arrays", Cornell University, Ithaca, NY, 2004.

[15] 林慶一郎、"非線形状態での線形励起シミュレーション"、平成 19 年度卒業研究、金沢大学理学部物理学科。

[16] M.Sato, S.Yasui, M. Kimura, T. Hikihara and A. J. Sievers, "Management of localized energy in discrete nonlinear transmission lines", EuroPhysics Letters **80**,30002(pp.1-5)(2007).

[17] G. P. アグラワール、非線形ファイバー光学、吉岡書店。

[18] M. Sato, L. Q. English, B. E. Hubbard and A. J. Sievers, "Influence of sample shape on the production of intrinsic localized modes in an antiferromagnetic lattice", J. Appl. Phys. **91**, pp. 8676-8679 (2002).

[19] M. Sato and A. J. Sievers, "Visualization intrinsic localized modes with a nonlinear micromechanical array", Low Temperature Physics (Fizika Nizkih Temperatur) Vol.**34**, N7, pp.687-694 (2008).

[20] 山口世理、"THz 領域非線形 4 波混合分光装置の開発"、平成２０年度修士論文、金沢大学自然科学研究科数物科学専攻。

[21] 堀洋祐、"大強度のパルスレーザーを用いた非線形分光器の作成"、平成 19 年度卒業研究、金沢大学理学部物理学科。

[22] 吉池貴子、"CO_2 レーザーと FIR レーザーの発振に向けて"、平成 19 年度卒業研究、金沢大学理学部物理学科。

[23] 山口世理、"FIR レーザーの設計"、平成 18 年度卒業研究、金沢大学理学部物理学科。

[24] 山中正宣, "サブミリ波レーザーとその応用", 応用物理,**49**(1980)813.

[25] 阪井清美、廣本宜久、" テラヘルツ・遠赤外分光 I.テラヘルツ分光概論"、分光研究、**54**、ｐ.43（2005）.

[26] 萩行正憲、"テラヘルツ・遠赤外分光 III.超高速分光"、分光研究、**54**、ｐ.181（2005）.

[27] M. Suzuki, M. Tonouchi, K. Fujii, H. Ohtake, and T. Hirosumi, "Excitation wavelength dependence of terahertz emission from semiconductor surface", Appl. Phys. Lett. **89,** 091111(2006).

[28] S. A. Kiselev and A. J. Sievers, "Generation of intrinsic vibrational gap modes in three-dimensional ionic crystals", Phys. Rev. B **55**, 5755 (1997).

[29] A. J. Sievers, M. E. Manley 他、私信。

[30] 安井智史、"非線形状態にある反強磁性体のスピン波共鳴構造"、平成２０年度修士論文、金沢大学自然科学研究科数物科学専攻。

[31] H.B.Callen, "A ferromagnetic dynamical equation", J. Phys. Chem. Solids **4**, 256

(1958).

参考資料

1. "Management of localized energy in discrete nonlinear transmission lines", M.Sato, S.Yasui, M. Kimura, T. Hikihara and A. J. Sievers, EuroPhysics Letters **80**, 30002(pp.1-5)(2007).

２次の非線形性による ILM が生成できることを実験的に示した。

2. "Visualization intrinsic localized modes with a nonlinear micromechanical array" M. Sato and A. J. Sievers, Low Temperature Physics (Fizika Nizkih Temperatur) Vol.**34**, N7, pp.687-694 (2008).

ILM が非線形性と分散性のつり合いで生成されていることを示唆した。

3. "Experimental and numerical exploration of intrinsic localized modes in an atomic lattice", M. Sato and A. J. Sievers, J. Biol. Phys., accepted (2009)

固体の ILM 研究についてのレビュー。