

テラヘルツ帯分光研究室

森 研究室

内容

テラヘルツ光とは

テラヘルツ分光による物性研究

現在のテラヘルツ分光研究

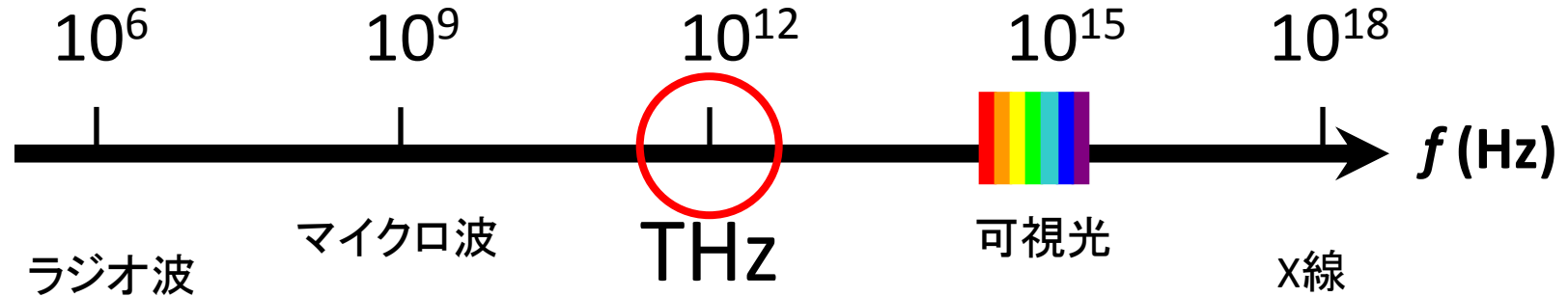
ガラスのテラヘルツ帯普遍的励起ボゾンピーク

テラヘルツ時間領域分光装置

参加学会など

テラヘルツ波とは

$$1 \text{ THz} = 33.3 \text{ cm}^{-1} = 4.14 \text{ meV} = 48 \text{ K}$$



ラジオ波(MHz)

ラジオ(FM~80MHz)
アマチュア無線
無線呼出しボタン
[1MHz→波長300m]

マイクロ波(GHz)

携帯電話(プラチナバンド~800MHz)
電子レンジ(2.450GHz)
[1GHz→波長30cm]

テラヘルツ波・遠赤外線(THz)

室温の輻射(~6THz)
光学フォノン(物質の指紋領域)
[1THz→波長0.3mm]
[テラヘルツ帯:0.1~100THz(1THz=4.14meV)]
[波長1000 μm -25 μm (10~400 cm^{-1})]

中赤外線

光学フォノン
[波長25 μm -2.5 μm (400~4000 cm^{-1})]

近赤外線

赤外線カメラ、赤外線通信、家電用リモコン
[波長2.5 μm -0.7 μm (4000~14000 cm^{-1})]

可視光線

750nm(赤)~380nm(紫)(1.5~3eV)

紫外線

400nm~10nm(3~100eV)

X線

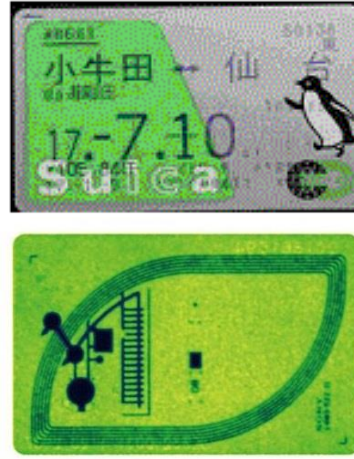
波長1Å→12.5keV

テラヘルツ波イメージングの例

<http://www.aip.nagoya-u.ac.jp/unite/jp/detail/0000075.html>

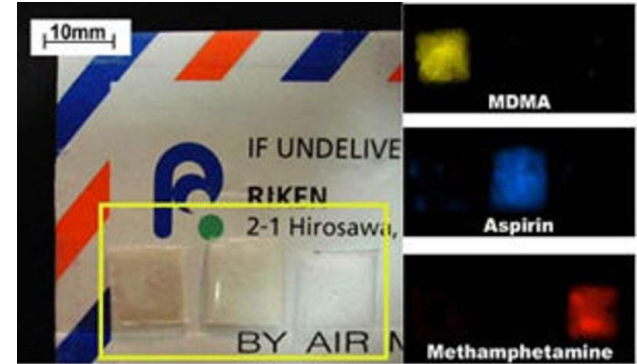


上は乾燥食品(エビ、唐辛子)の可視光画像、下はそれぞれのテラヘルツ波透過像

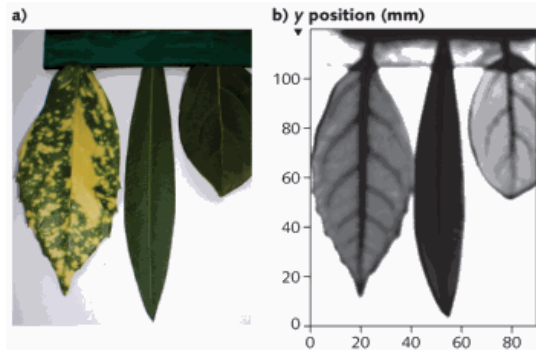


電子カードのテラヘルツ波透過像

K. Kawase. THz-imaging for drug detection and LSI inspection. Optics & Photonics News. 2004, vol. 15, issue. 10, p. 34-39.



テラヘルツ波の透過性と吸収スペクトルを用いた封筒内の違法薬物検出



F. Schuster et al., "A Broadband Terahertz Imager in a Low-cost CMOS Technology," Int. Solid-State Circuits Conf. (2011).
Leaves are seen in visible light (a) and at 0.3 GHz in transmission imaging (b).



New terahertz tuner could find applications in security scanners.

<http://physicsworld.com/cws/article/news/2012/jun/12/new-tuner-could-bring-terahertz-to-the-masses>

粉体中の異物 Materials in powder

シリコン Silicon	ケイ素化合物 Silicon compound	ウレタン Urethane

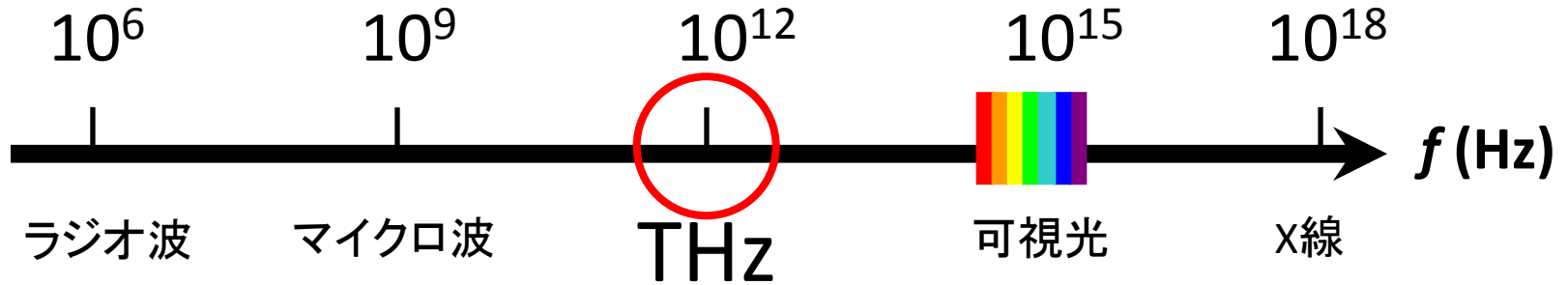
目視画像 Visual image

粉体: ラクトース
Lactose powder

T線画像 Terahertz image	スペクトル デザイン社HP	

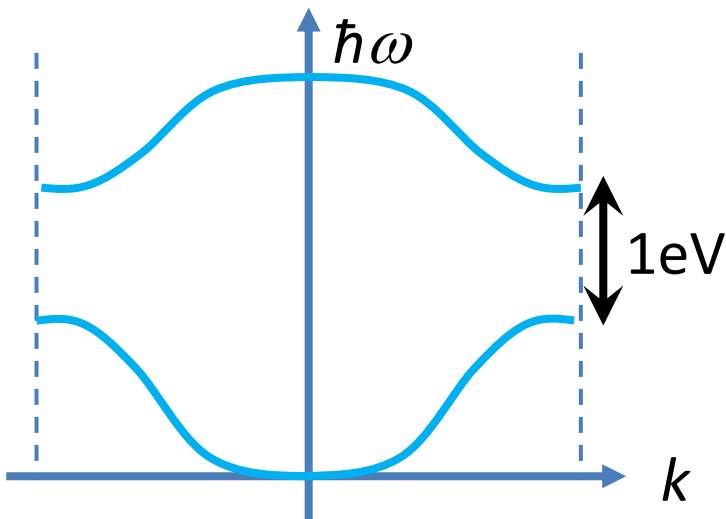
テラヘルツ帯について

$$1 \text{ THz} = 33.3 \text{ cm}^{-1} = 4.14 \text{ meV} = 48 \text{ K}$$

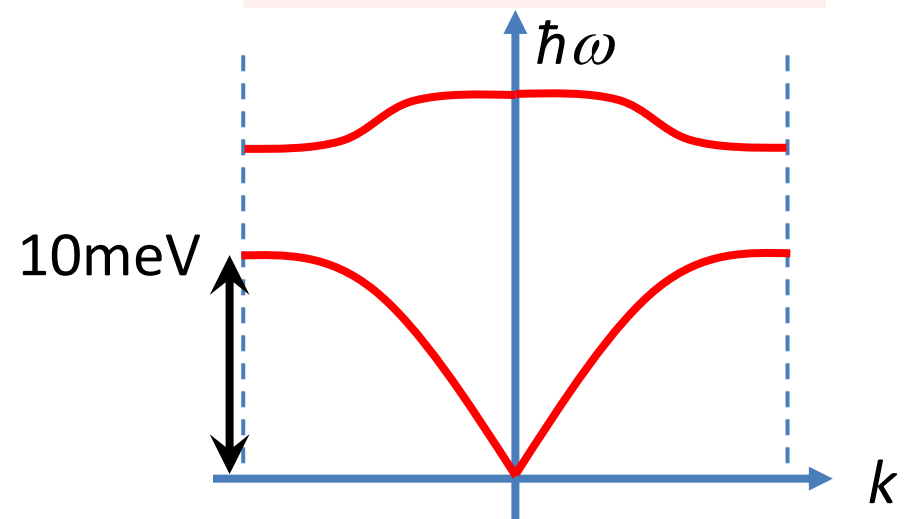


$$1 \text{ THz} = 33.3 \text{ cm}^{-1} = 4.14 \text{ meV} = 48 \text{ K}$$

電子構造:
フェルミ準位近傍

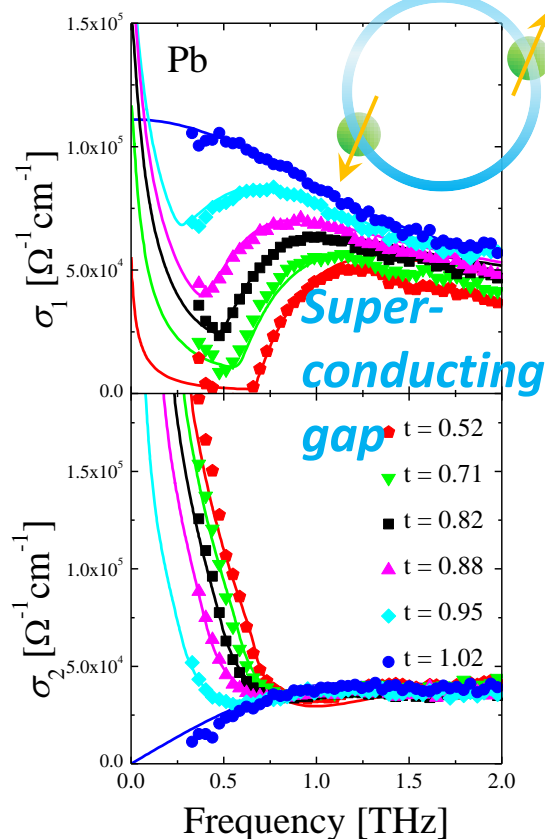
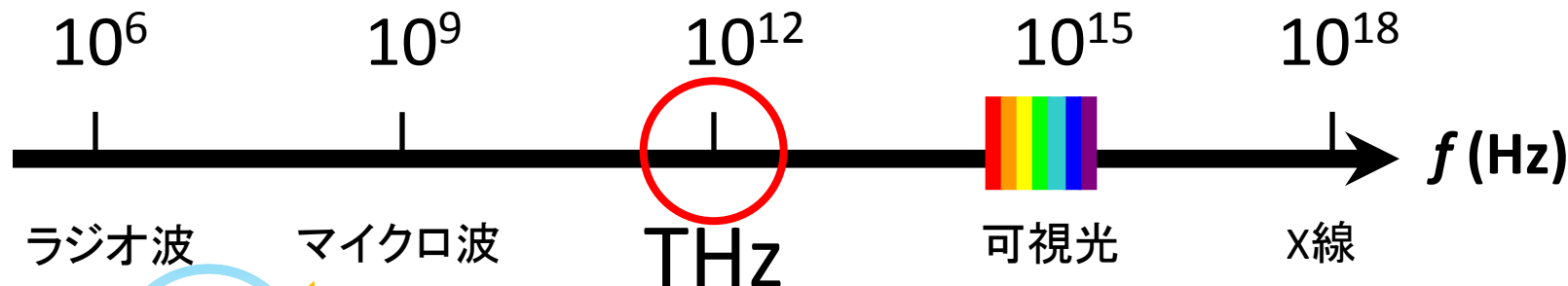


フォノン構造:
音響フォノンの終わり
低周波光学フォノン



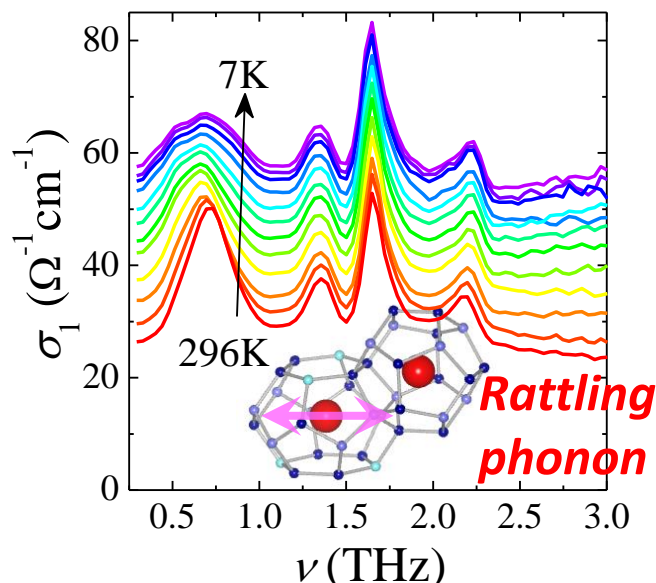
THz帯の様々な励起

$$1 \text{ THz} = 33.3 \text{ cm}^{-1} = 4.14 \text{ meV} = 48 \text{ K}$$

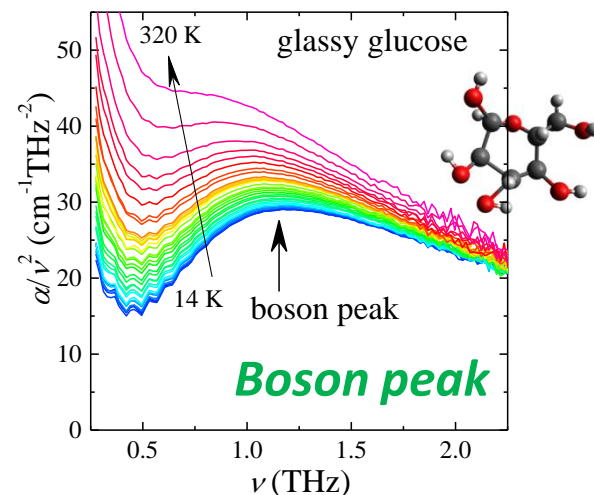


電子構造: 超伝導ギャップ, スピン密度波, 電荷密度波, エレクトロマグノン, ...

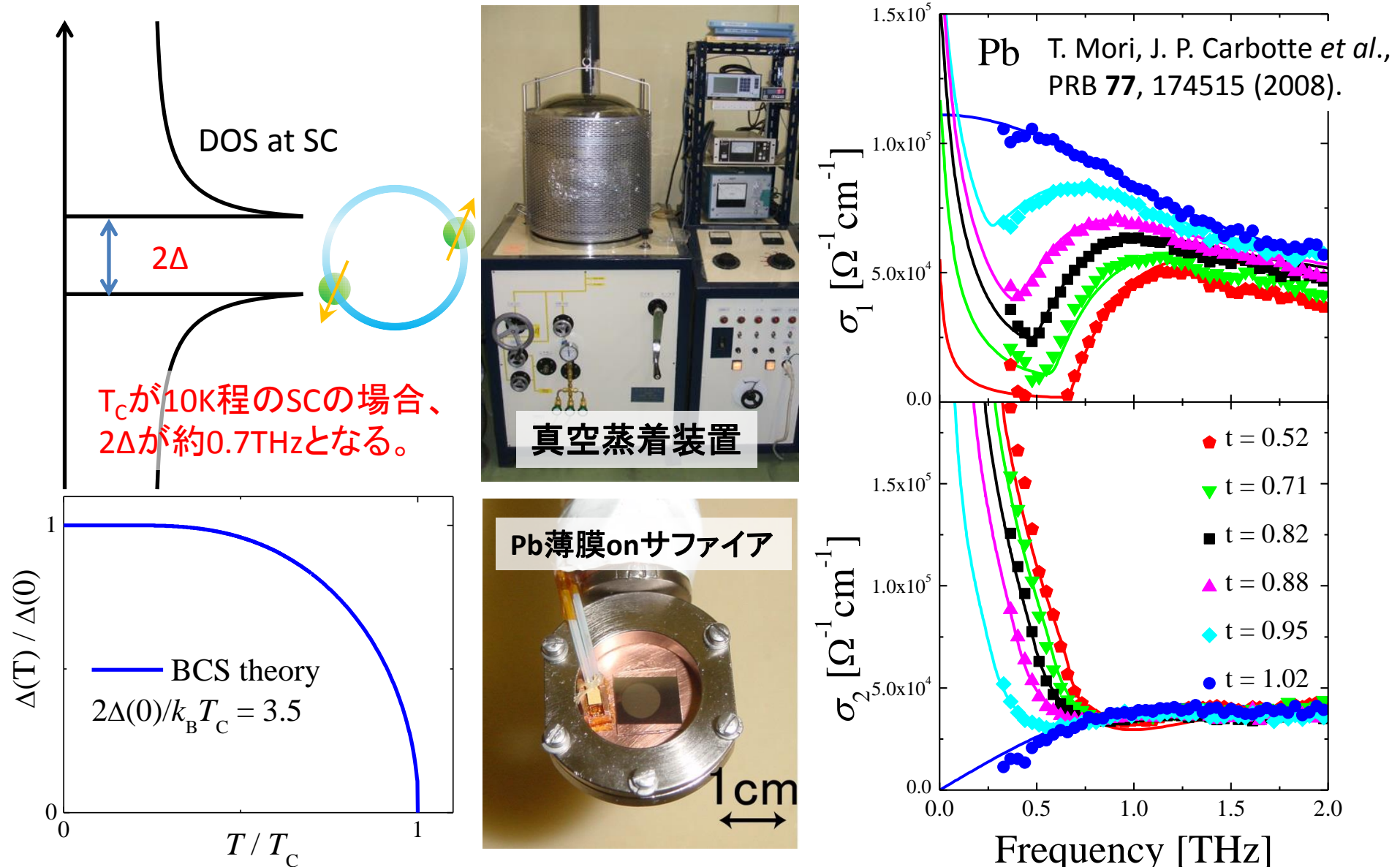
原子振動: 大振幅非調和振動(ラットリング), ソフトモード, 分子間振動, ...



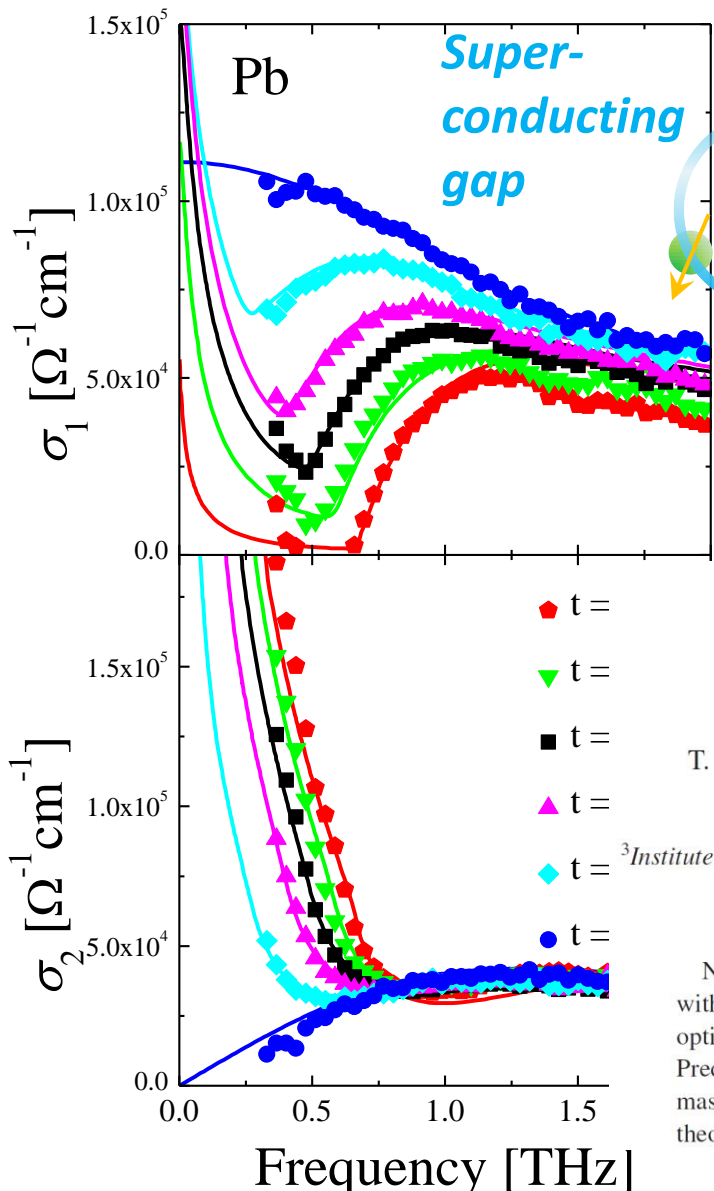
ガラス状態: VDOSピーク, ボゾンピーク, ...



THz分光による研究例：超伝導



THz分光による研究例：超伝導



Prof. J. P. Carbotte
(McMaster Univ.)

i like this data



Theorists love to calculate optical conductivity! ❤️



Prof. E. J. Nicol
(Guelph Univ.)

PHYSICAL REVIEW B 77, 174515 (2008)

Optical self-energy of superconducting Pb in the terahertz region

T. Mori,¹ E. J. Nicol,^{2,*} S. Shiizuka,¹ K. Kuniyasu,³ T. Nojima,³ N. Toyota,¹ and J. P. Carbotte⁴

¹Physics Department, Graduate School of Science, Tohoku University, Sendai 980-8578, Japan

²Department of Physics, University of Guelph, Guelph, Ontario, N1G 2W1

³Institute for Materials Research and Center for Low Temperature Science, Tohoku University, Sendai 980-8577, Japan

⁴Department of Physics and Astronomy, McMaster University, Hamilton, Ontario, L8S 4M1

(Received 5 March 2008; revised manuscript received 6 May 2008; published 28 May 2008)

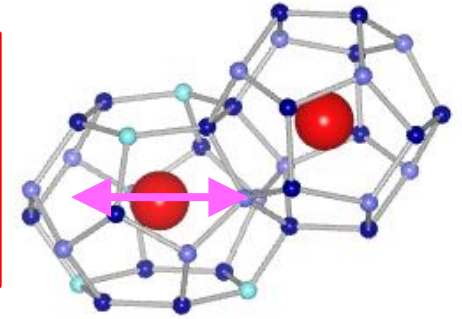
New terahertz data on the optical conductivity of Pb are presented, as well as a detailed Eliashberg analysis with particular emphasis on phonon-assisted processes not included in a BCS approach. Consideration of the optical self-energy instead of the conductivity itself helps highlight the differences with BCS predictions. Predicted coherence peaks are observed in the optical scattering rates. Impurities enhance the optical effective mass at zero frequency by an order of magnitude and induce a large peak at twice the gap in agreement with theory. This work illustrates the usefulness of the optical self-energy for the analysis of data.

Physical Review B誌
Editors' suggestion 受賞

THz分光による研究例：熱電材料

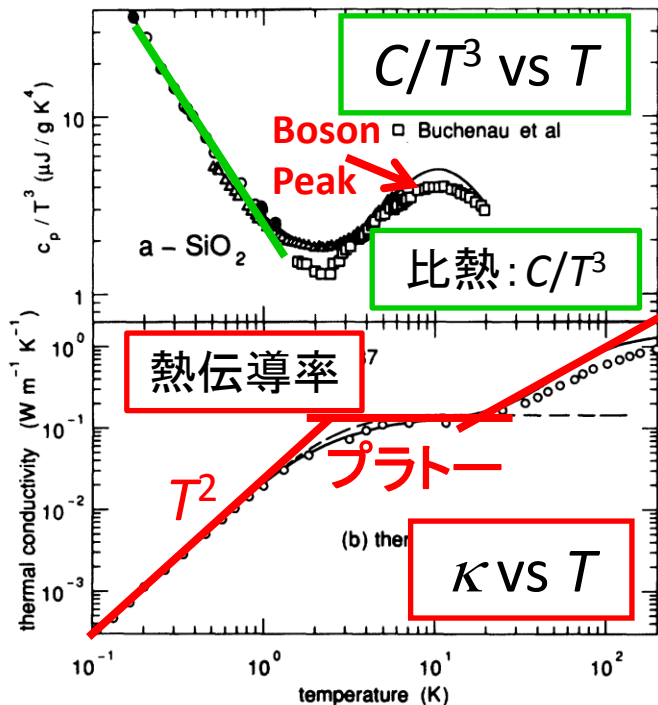
ガラスの熱物性は、
普遍的な温度依存性を示す（未解決問題）。

単結晶において、ガラスの熱物性が観測された（**フォノンガラス**）。

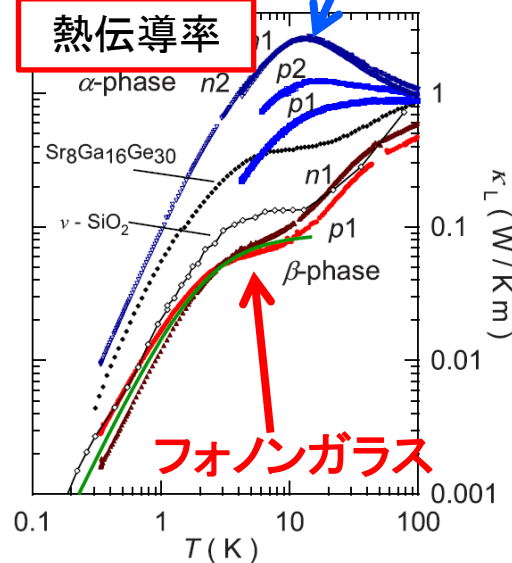


シリカガラス

R. C. Zeller and R. O. Pohl, PRB (1971).
L. Gil *et al.*, PRL **70**, 182 (1993).

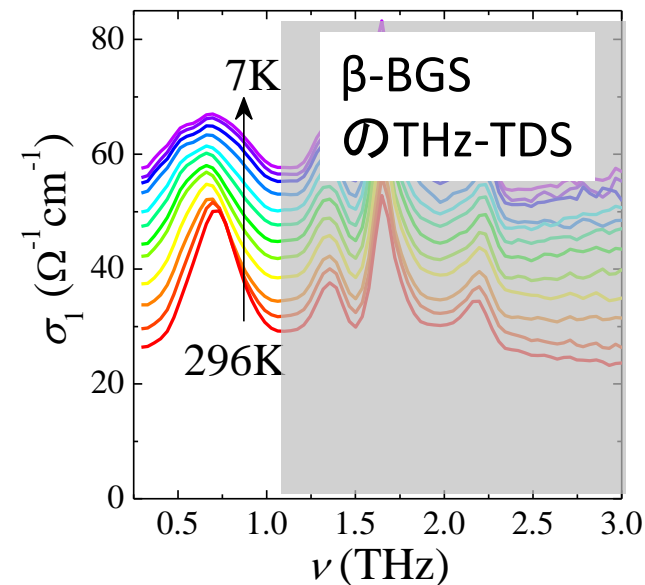


フォノン結晶



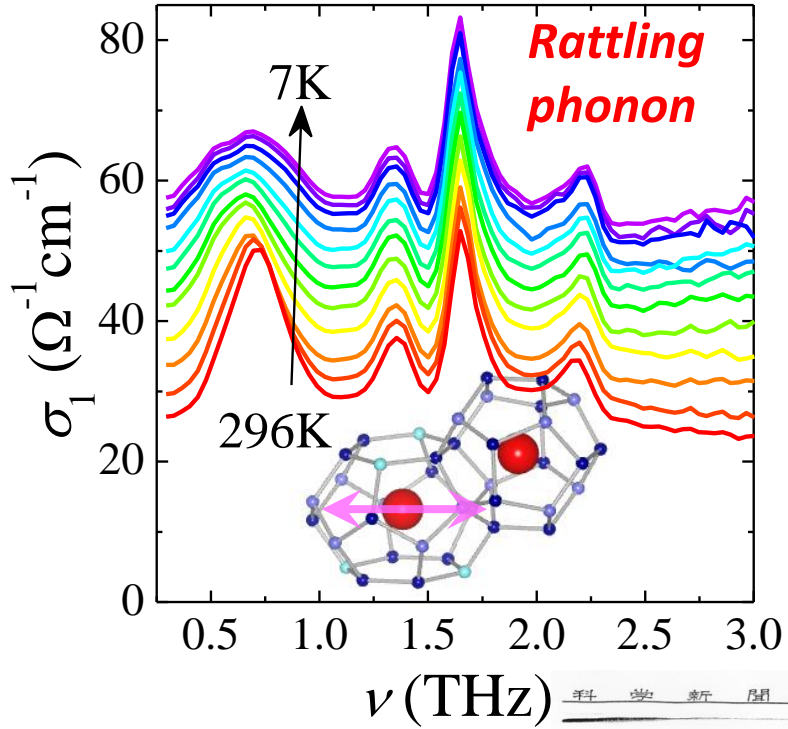
K. Suekuni *et al.*,
PRB **77**, 235119 (2008).

熱電材料：クラスレート



T. Mori *et al.*, PRL **106**, 015501 (2011).

THz分光による研究例：熱電材料



PRL 106, 015501 (2011)

PHYSICAL REVIEW LETTERS

week ending
7 JANUARY 2011

Optical Conductivity Spectral Anomalies in the Off-Center Rattling System $\beta\text{-Ba}_8\text{Ga}_{16}\text{Sn}_{30}$

T. Mori, K. Iwamoto, S. Kushibiki, H. Honda, H. Matsumoto, and N. Toyota

Department of Physics, Graduate School of Science, Tohoku University, Sendai 980-8578, Japan

M. A. Avila

Centro de Ciências Naturais e Humanas, Universidade Federal do ABC, Santo André-SP, 09210-170, Brazil

K. Suekuni

Department of Quantum Matter, ADSM, Hiroshima University, Higashi-Hiroshima 739-8530, Japan

T. Takabatake

Department of Quantum Matter, ADSM and Institute for Advanced Material Research, Hiroshima University, Higashi-Hiroshima 739-8530, Japan

(Received 23 July 2010; published 6 January 2011)

We present optical conductivity studies of the type-I clathrate $\text{Ba}_8\text{Ga}_{16}\text{Sn}_{30}$, using a terahertz time-domain spectrometer (0.3–3.0 THz). The lowest-lying spectral peak at 0.72 THz due to the $\text{Ba}(2)$ ion's off-center vibration in the oversized cage shows a drastic and anomalous temperature dependence. Below about 100 K, the single broad peak splits into two subpeaks, and with further lowering of the temperature, the spectral shape of this so-called rattling phonon shows non-Boltzmann broadening to the point that the linewidth becomes comparable to the peak frequency. Whereas the initial splitting can be understood by assuming a multiwell anharmonic potential, the strong linewidth broadening toward low temperature cannot, since the Boltzmann factor generally sharpens the low-temperature spectra. The observed behavior suggests strong interaction between the local anharmonic phonons and other excitations.

Physical Review Letters誌
プレスリリース、新聞報道

科学新聞
週刊
科学新聞社

ラットリング振動
テラヘルツ光で撮影
—東北大、広島大が成功—

東北大学の理研グループと広島大学の高島敏郎教授らの研究チームは、熱電材料の構造がわかれれば、熱電材料の効率を高められる。成果を米国物理学会の専門誌「フィジカル・レビュー・レターズ」に発表。今回の実験に使った熱電材料の単結晶

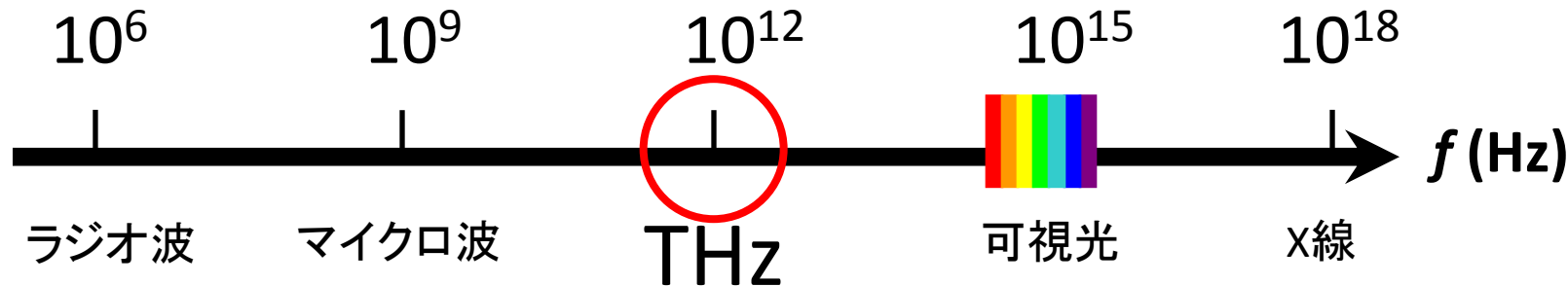
日経産業新聞

熱電材料
原子の振動観察
東北大など 電気変換効率化

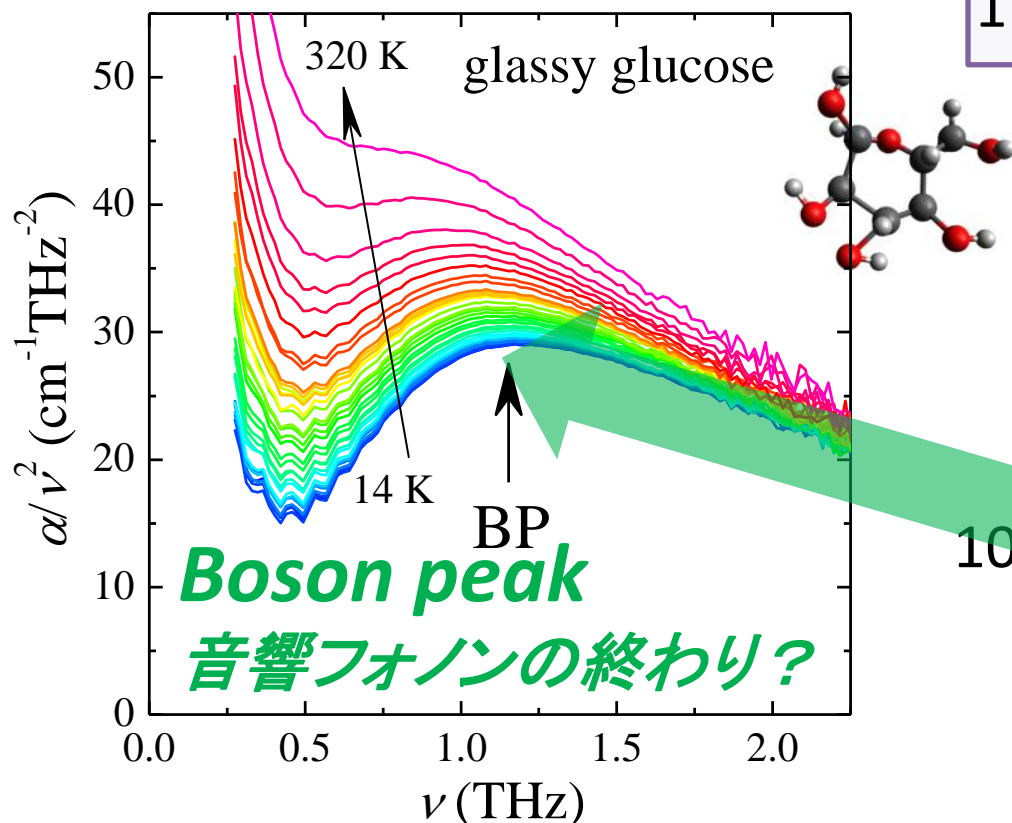
東北大学の豊田直樹教授と広島大学の高島敏郎教授らの研究チームは、熱電材料の構造がわかれれば、熱電材料の効率を高められる。成果を米国物理学会の専門誌「フィジカル・レビュー・レターズ」に発表。今回の実験に使った熱電材料の単結晶

ボゾンピークをTHz分光で検出できる¹⁰

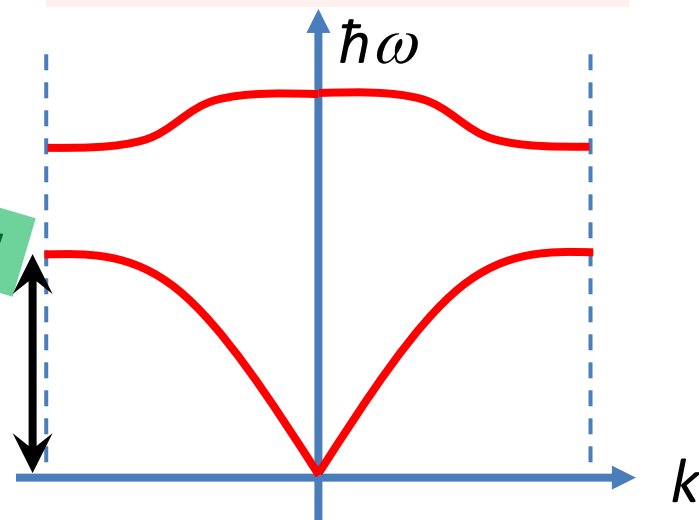
M. Kabeya, T. Mori *et al.*, PRB 94, 224204 (2016).



$$1 \text{ THz} = 33.3 \text{ cm}^{-1} = 4.14 \text{ meV} = 48 \text{ K}$$



フォノン構造:
音響フォノンの終わり
低周波光学フォノン



ガラスのボゾンピーク

ガラスの物理の未解決問題:

- ・ガラス転移
- ・ボゾンピーク (boson peak, BP)

テラヘルツ帯の普遍的励起。

BPは $\frac{g(\nu)}{\nu^2}$ のスペクトルに現れる。

過剰なVDOS $g(\nu)$: 結晶のデバイモデルから外れた振る舞い。

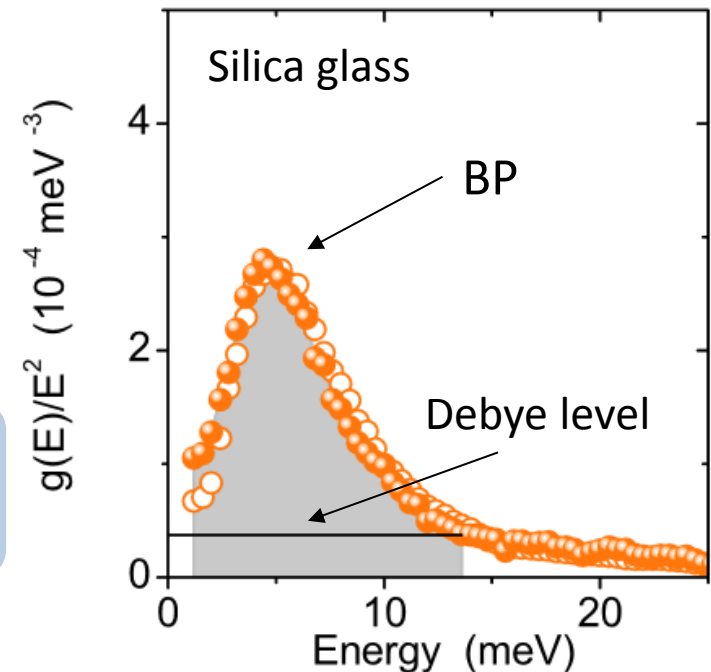
結晶

デバイモデル: $g(\omega) \propto \omega^2$ (3次元の場合),

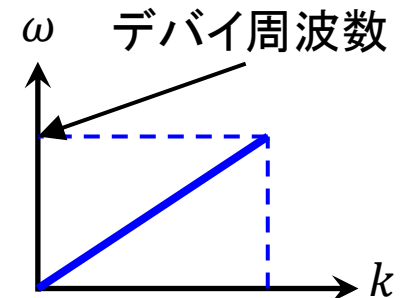
ここでは、音響フォノンが比例関係を持つと仮定している。

$$g_{Debye}(\omega) = \frac{V\omega^2}{2\pi^2 v_D^3} \quad (v_D: \text{デバイ速度}, V: \text{体積})$$

$$1 \text{ THz} = 33.3 \text{ cm}^{-1} = 4.14 \text{ meV} = 48 \text{ K}$$



A. I. Chumakov *et al.* PRL 112, 025502 (2014).



ばねモデル、デバイモデル → 振動状態密度

3次元格子における状態密度

状態密度 $g(\omega)$: 単位体積、単位エネルギーあたりの状態数

一辺 L の立方体が N^3 個の基本格子を含む場合の周期的境界条件

$$\exp[i(k_x x + k_y y + k_z z)] \equiv \exp\{i[k_x(x + L) + k_y(y + L) + k_z(z + L)]\}$$

$$k_x, k_y, k_z = 0, \pm \frac{2\pi}{L}, \pm \frac{4\pi}{L}, \dots, \frac{2m\pi}{L}$$

波数空間では $(2\pi/L)^3$ の体積に1つのモードが存在するので、半径 k の球内に存在するモードは

$$N = \frac{\frac{4}{3}\pi k^3}{(2\pi/L)^3}$$

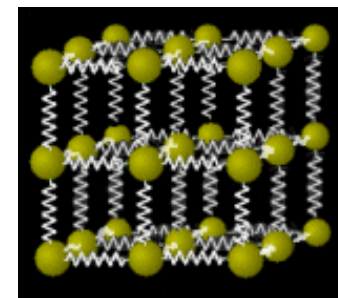
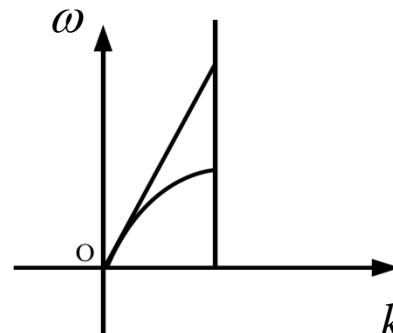
デバイモデル(debye model)

原子間に相互作用を取り入れた格子振動のモデル

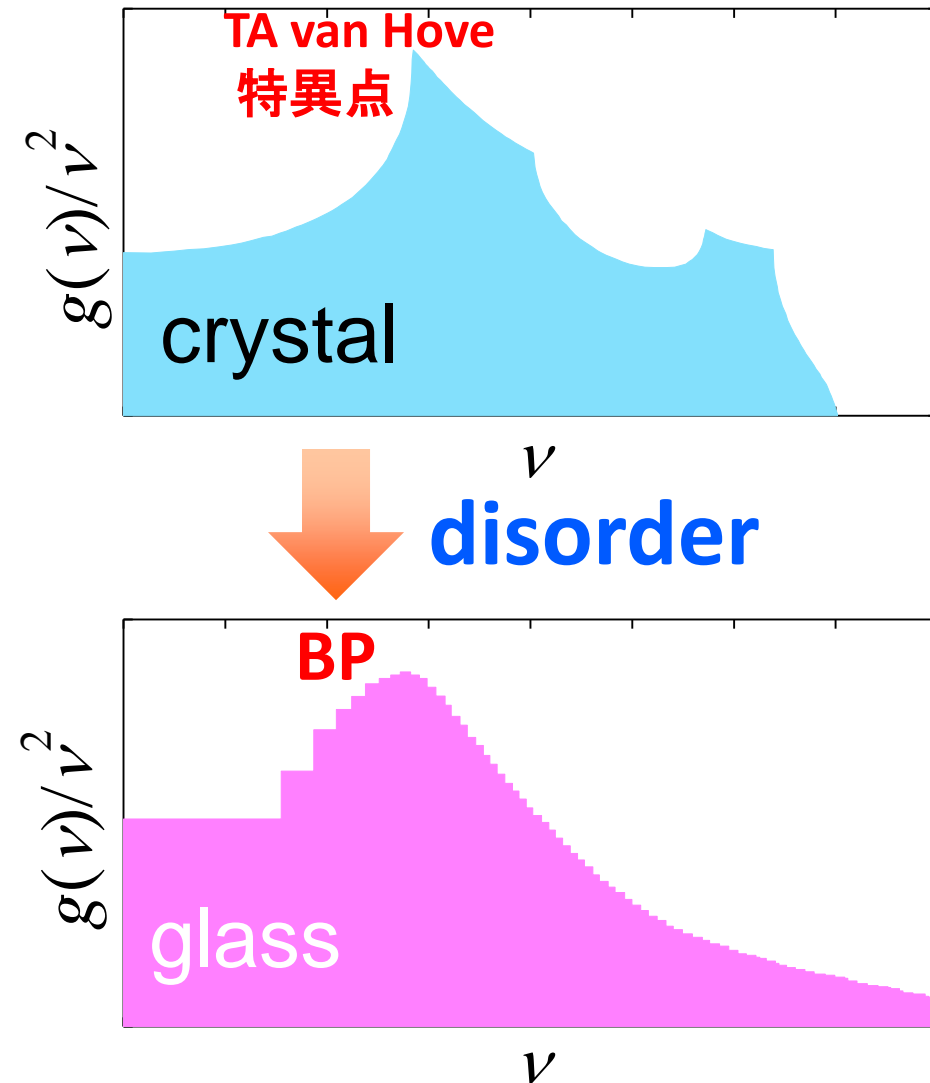
$$\omega = vk \quad (\text{デバイ近似})$$

$$N \cong \frac{V\omega^3}{6\pi^2 v^3}, \quad V = L^3$$

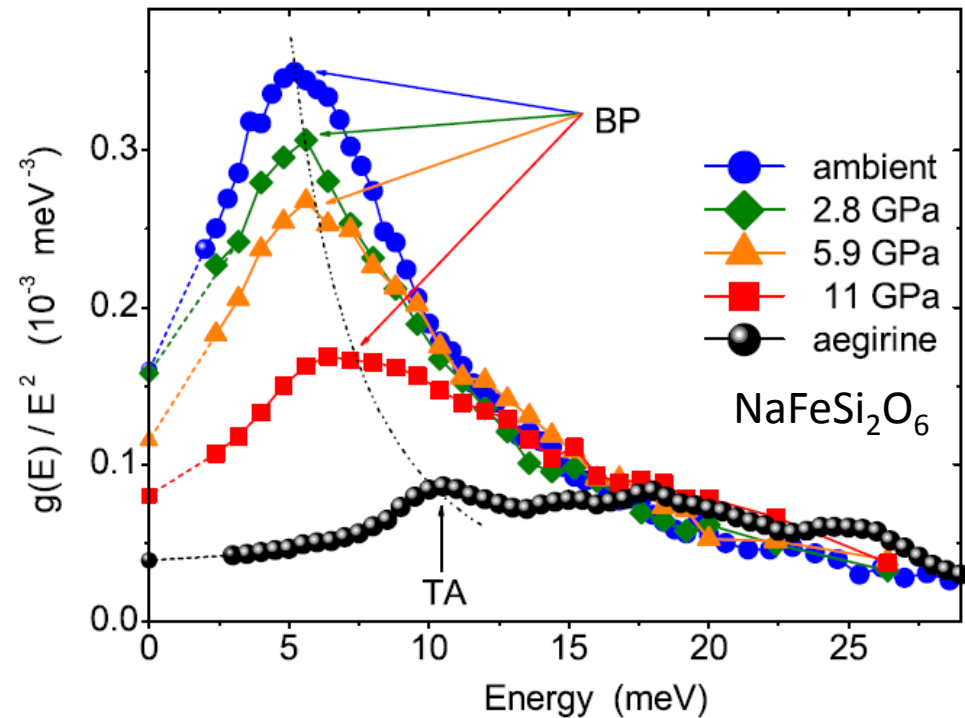
$$g(\omega) = \frac{dN}{d\omega} = \frac{V\omega^2}{2\pi^2 v^3}$$



ボゾンピークの起源？



$$1 \text{ THz} = 33.3 \text{ cm}^{-1} = 4.14 \text{ meV} = 48 \text{ K}$$

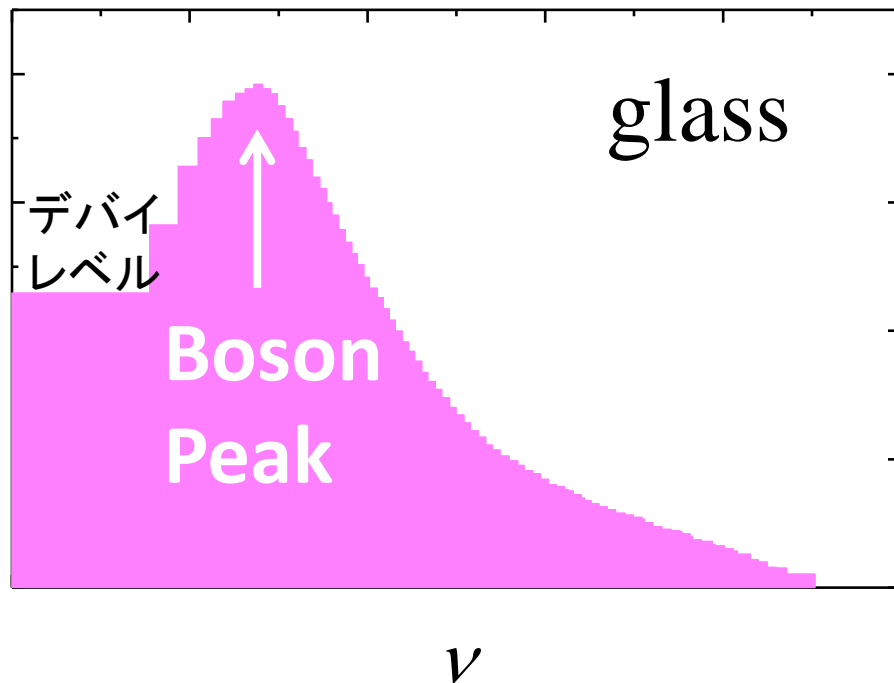


Naケイ酸塩ガラスのBPが対応する結晶のTA van Hove 特異点に変形していく...?

A. I. Chumakov *et al.*, PRL **106**, 225501 (2011).

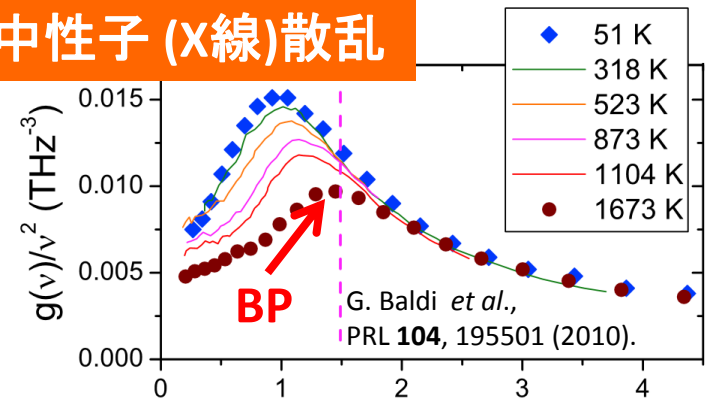
ボゾンピークの検出

BPはVDOSの異常として、テラヘルツ帯において普遍的に $g(\nu)/\nu^2$ のスペクトル表示に現れる。

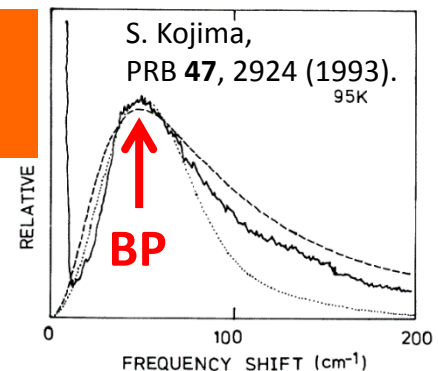


Data are depicted from R. Zorn, Physics **4**, 44 (2011).

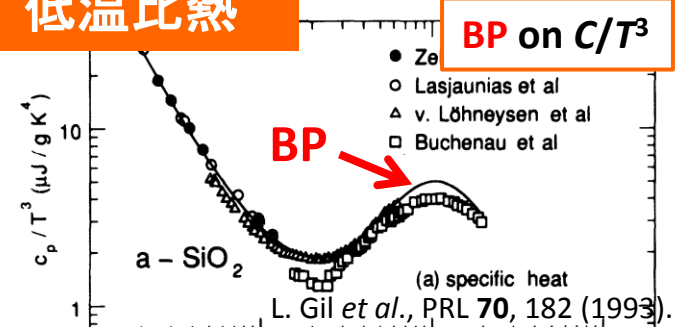
非弾性 中性子 (X線)散乱



低波数 ラマン散乱



低温比熱



赤外分光でBPは検出可能か？

非晶質物質に対して、

$$\alpha(\nu) = C_{IR}(\nu) \cdot g(\nu)$$

F. L. Galeener *et al.*, PRB 17, 1928 (1978).

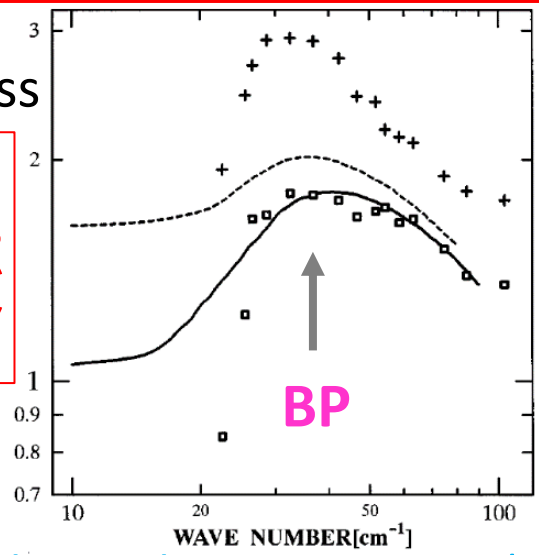
$\alpha(\nu)$: 吸収係数

$C_{IR}(\nu)$: 赤外振動結合定数

$$\frac{\alpha(\nu)}{\nu^2} = C_{IR}(\nu) \cdot \frac{g(\nu)}{\nu^2}$$

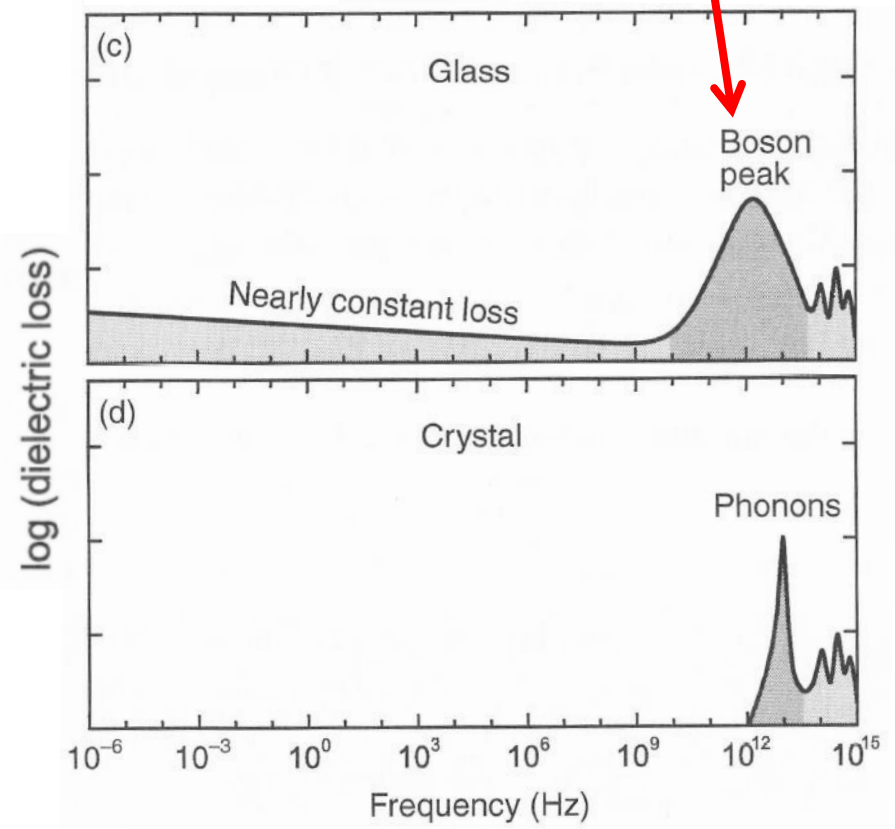
Silica glass

$\alpha(\nu) / \nu^2$



T. Ohsaka *et al.*, PRB 57, 4995 (1998).

近年のTHz分光研究者は、つい最近までVDOSピークをBPと勘違いしてきた。



A. Loidl *et al.* (2012)
“STRUCTURAL GLASSES AND SUPERCOOLED LIQUIDS”, Wiley.

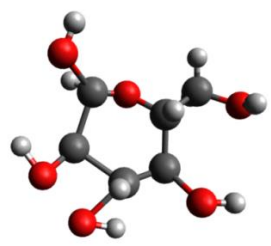
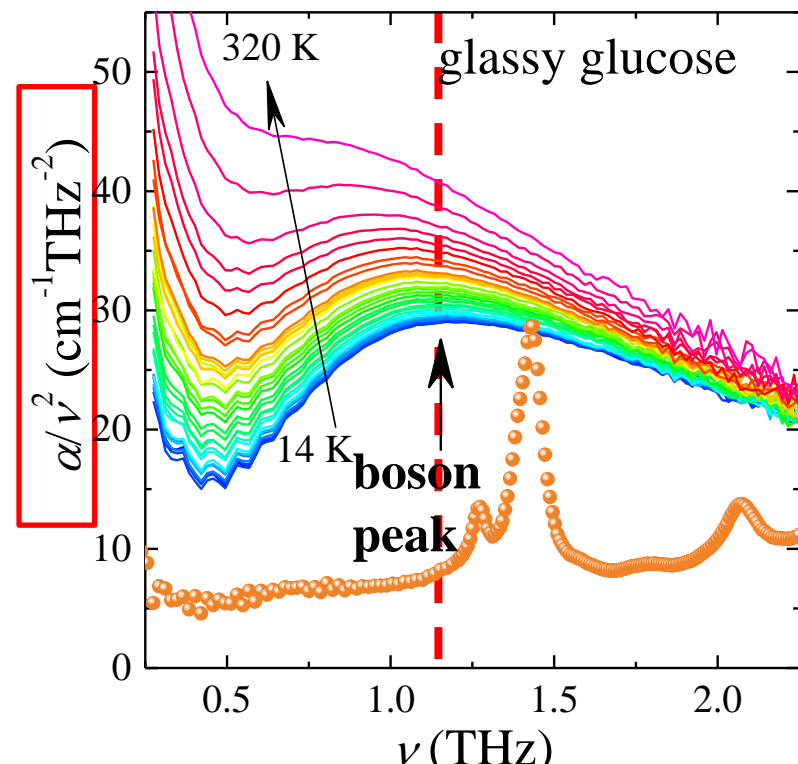
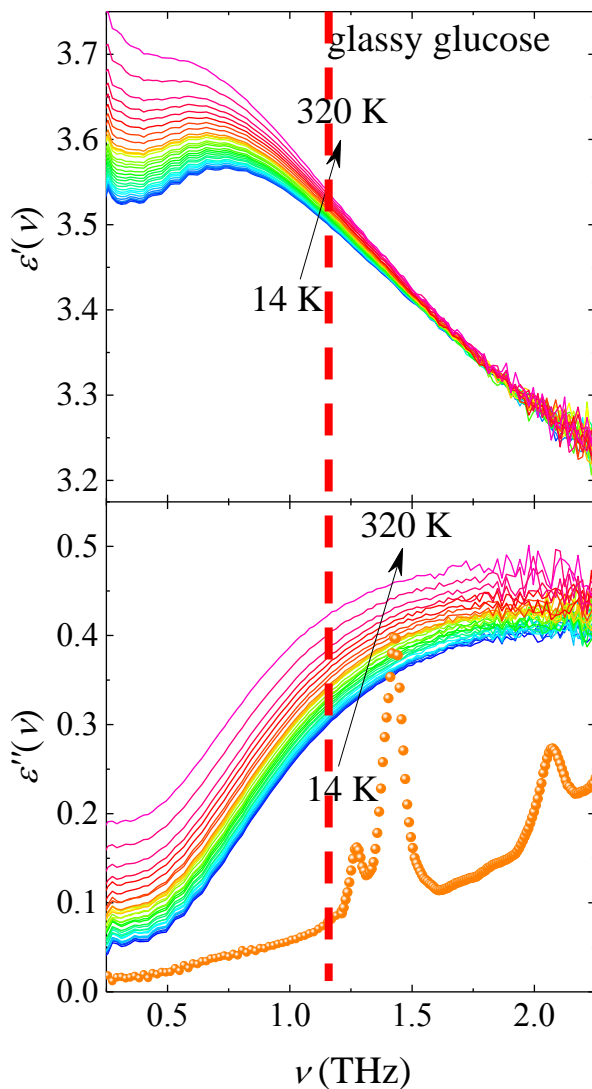
テラヘルツ時間領域分光による ガラスのボゾンピーク検出

M. Kabeya, T. Mori *et al.*, Phys. Rev. B **94**, 224204 (2016).

1 THz = 33.3 cm⁻¹ = 4.14 meV = 48 K

テラヘルツ時間領域分光

$$\frac{2\pi \cdot \epsilon''(\nu)}{c \cdot n(\nu) \cdot \nu} = \frac{\alpha(\nu)}{\nu^2} = C_{IR}(\nu) \cdot \frac{g(\nu)}{\nu^2}$$



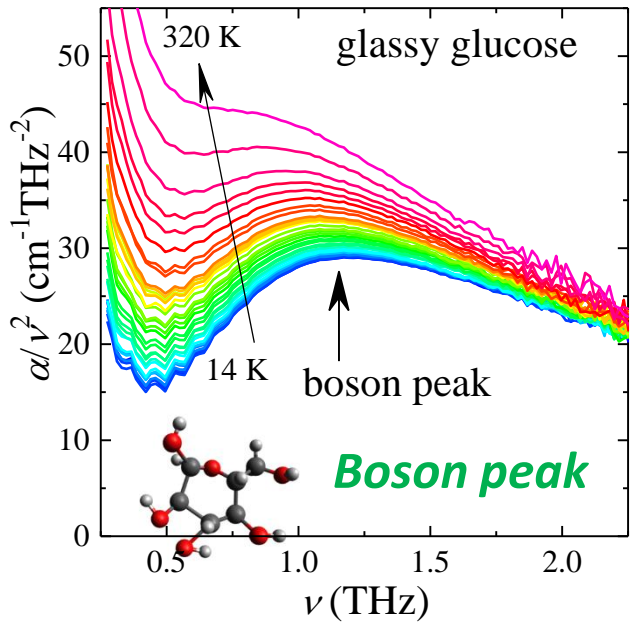
D-Glucose
(C₆H₁₂O₆)

BPは α/ν^2 (or ϵ''/ν) のスペクトルに現れる。

M. Kabeya, T. Mori *et al.*, Phys. Rev. B **94**, 224204 (2016).

テラヘルツ時間領域分光による ガラスのボゾンピーク検出

M. Kabeya, T. Mori *et al.*, Phys. Rev. B **94**, 224204 (2016).



PHYSICAL REVIEW B **94**, 224204 (2016)

Boson peak dynamics of glassy glucose studied by integrated terahertz-band spectroscopy

Mikitoshi Kabeya,¹ Tatsuya Mori,^{1,*} Yasuhiro Fujii,² Akitoshi Koreeda,² Byoung Wan Lee,³ Jae-Hyeon Ko,³ and Seiji Kojima¹

¹Division of Materials Sciences, University of Tsukuba, 1-1-1 Tennodai, Tsukuba, Ibaraki 305-8573, Japan

²Department of Physical Sciences, Ritsumeikan University, 1-1-1 Noji-higashi, Kusatsu, Shiga 525-8577, Japan

³Department of Physics, Hallym University, 1 Hallymdaehakgil, Chuncheon, Gangwon-do 24252, Korea

(Received 7 October 2016; revised manuscript received 25 November 2016; published 21 December 2016)

We performed terahertz time-domain spectroscopy, low-frequency Brillouin light scattering on vitreous glucose to investigate the boson peak (BP) dynamics. In the Brillouin frequency range, the BP is clearly observed around 1.1 THz. Comparing the complex dielectric constant spectra show a universal dispersive behavior only below the BP frequency. As an analytical scheme, we propose the relaxation function coupling coefficient (RCC), which is obtainable from the combination of the far-infrared and Raman spectra. The RCC reveals that the infrared absorption coupling coefficient $C_{IR}(\nu)$ of the vitreous glucose behaves differently on frequency which is different from Taraskin's model of $C_{IR}(\nu) = A + B\nu^2$ [S. N. Taraskin *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 055704 (2006)]. The nonlinearity of $C_{IR}(\nu)$ might require modification of the second term of the model. The constant and inverse sound velocity shows an apparent discontinuity with the flattened mode observed in the neutron scattering study [N. Violini *et al.*, *Phys. Rev. B* **85**, 134204 (2012)] and suggests a coupling between the transverse acoustic and flattened modes.

Physical Review B誌掲載
& プレスリリース、解説記事...
→現在の研究展開へ



報道関係者各位

テラヘルツ光でガラス^{注1)}の普遍的励起ボゾン
～ガラスの物理の未解決問題^{注3)}の



研究最先端

テラヘルツ分光で見るガラスのボゾンピーク

¹筑波大学 数理物質系 物質工学域, ²立命館大学 理工学部 物理科学科

森 龍也¹, 藤井 康裕², 小島 誠治¹

Boson peak dynamics investigated by terahertz spectroscopy

Tatsuya Mori¹, Yasuhiro Fujii², Seiji Kojima¹

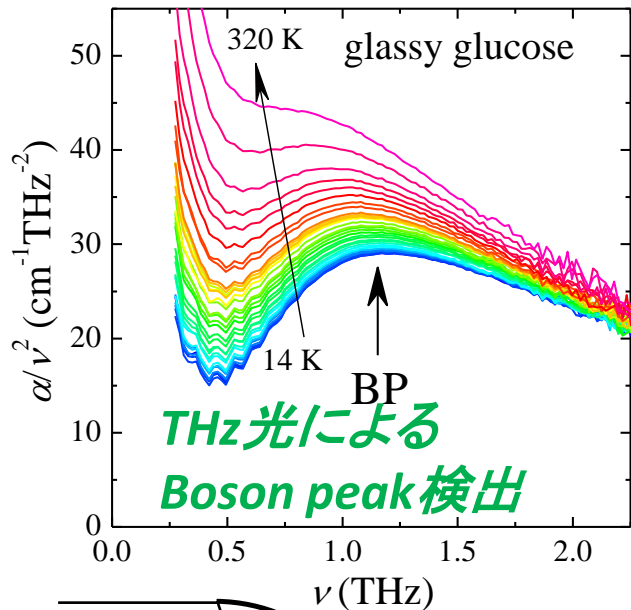
¹Division of Materials Science, University of Tsukuba

²Department of Physical Sciences, Ritsumeikan University

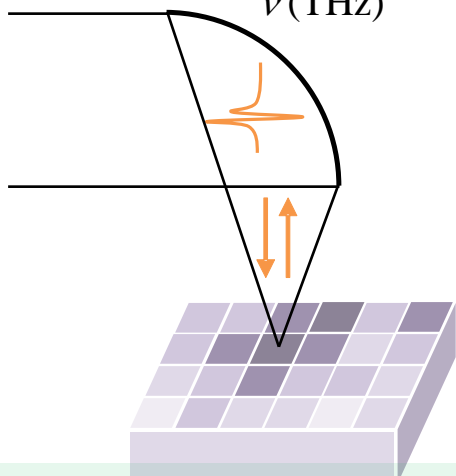
研究成果のポイント

- 身近な糖類であるグルコース(ブドウ糖)ガラスのボゾンピーク^{注4, 図1)}で検出することに成功しました。
- THz スペクトルとラマンスペクトルを用いた、BP の新しい評価^{注2)}で、BPの起源を説明するモデル^{注3)}の検証に成功しました。

ボゾンピークに対し、 THz光の利用の可能性は？



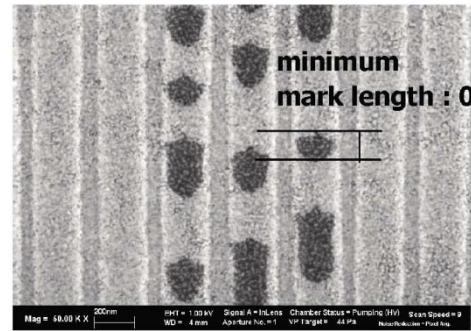
THz光による
Boson peak 検出



ボゾンピークと物性評価

新規な方法で工業的に
応用利用可能？

Track pitch : 0.32 μm



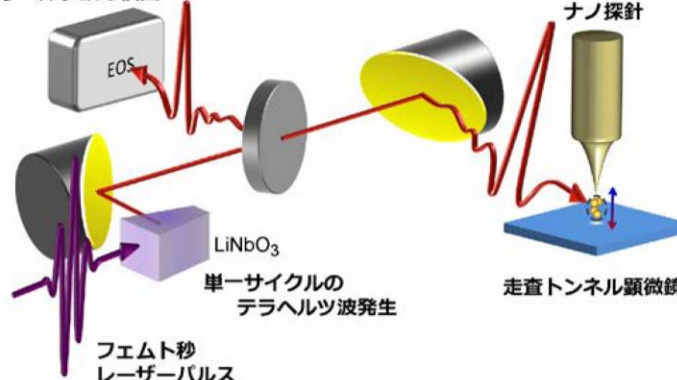
SPring-8 利用者情報 / 2011年5月 69

Film thickness : 6 nm

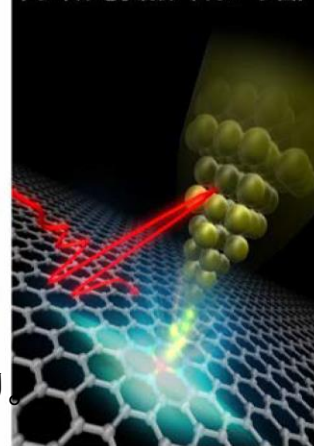
高強度THz光の応用

位相制御テラヘルツ STM の模式図とトンネル電子制御のイメージ図

電気光学効果 (EOS) による
テラヘルツ波の検出

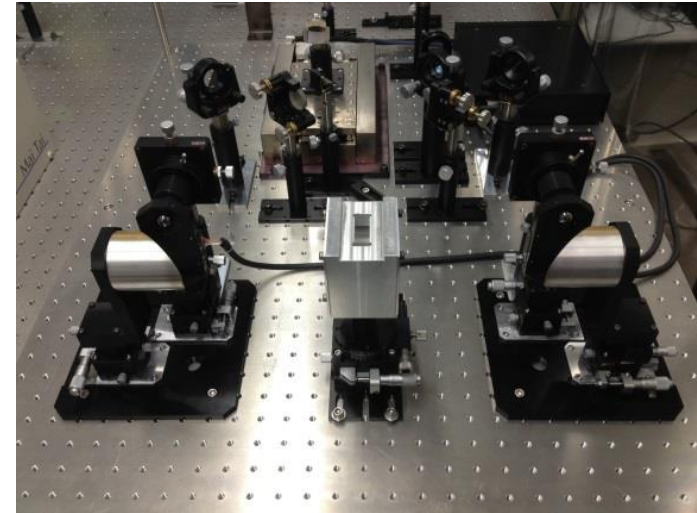
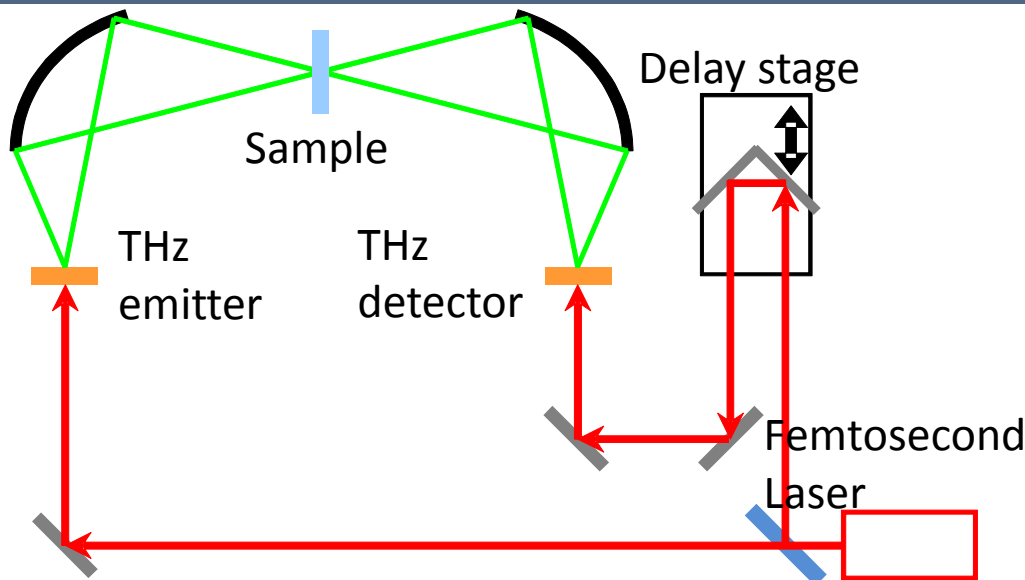


位相制御テラヘルツ波による
トンネル電子制御 (イメージ図)



横国大、筑波大プレスリリースより
武田研、重川研

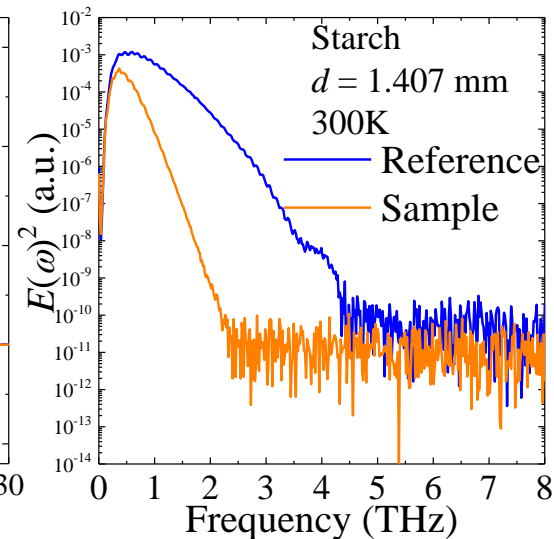
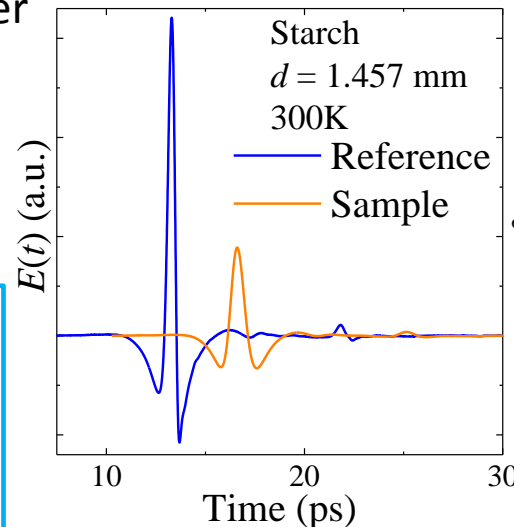
Terahertz time-domain spectroscopy

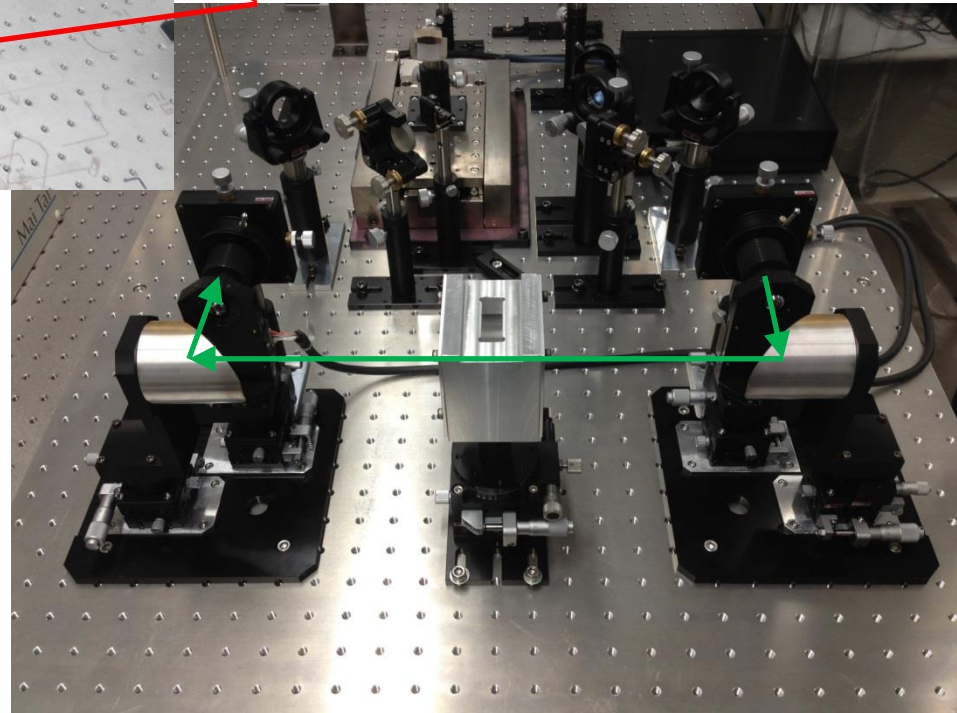
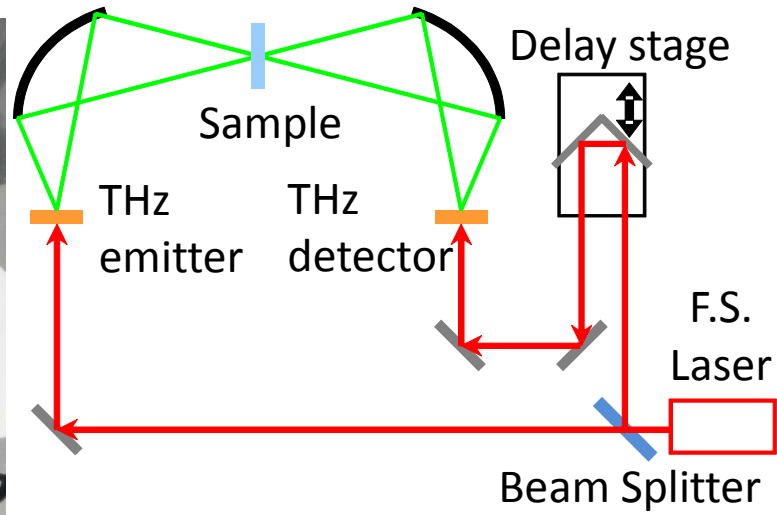
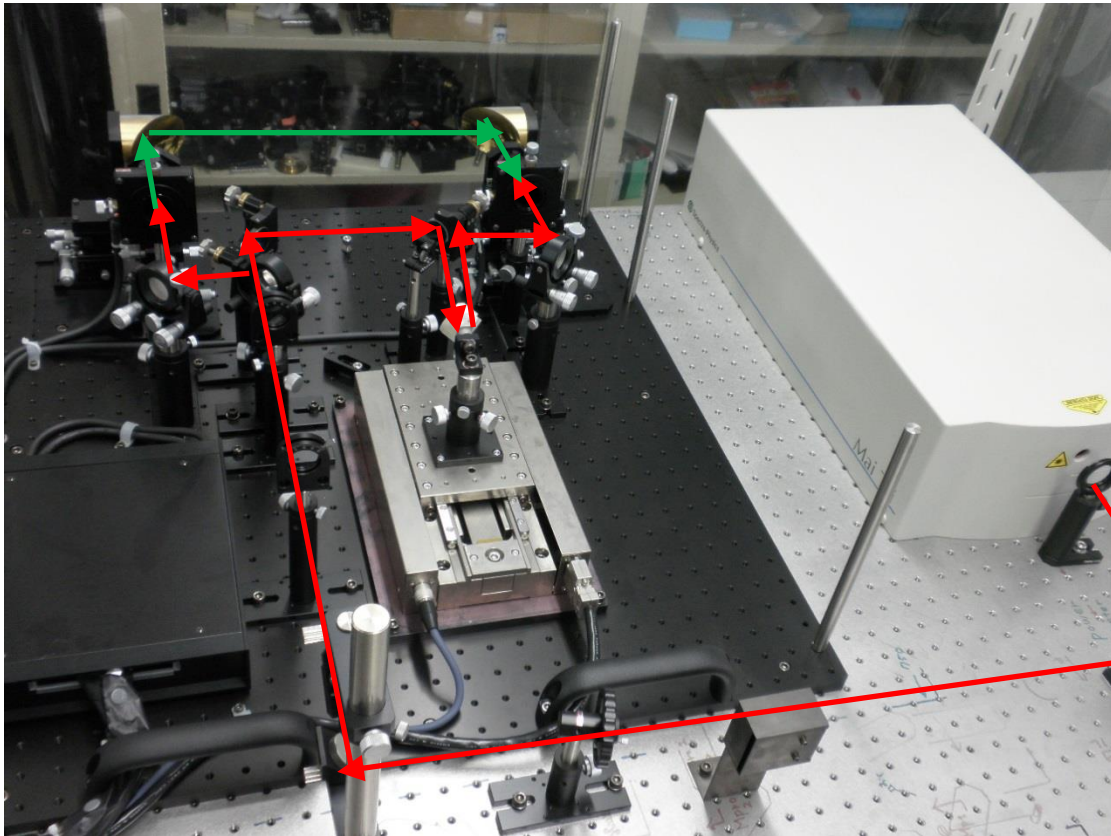


Femtosecond Laser
 $\lambda = 780 \text{ nm}$
 time-width $< 100 \text{ fs}$
 Repetition rate: 50 MHz
 Power for emitter: $\sim 10 \text{ mW}$

THz-TDSはTHz波の電場の時間波形を記録できる。

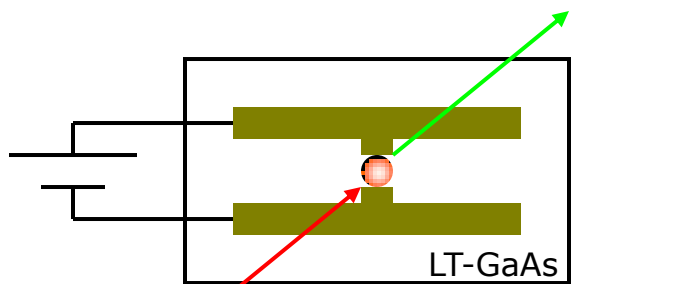
→Kramers-Kronig変換をすることなしに複素光学定数 (屈折率, 誘電率, 伝導率) を決定できる。





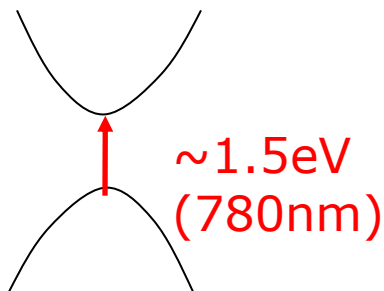
光伝導アンテナ: THz波発生

光伝導アンテナ

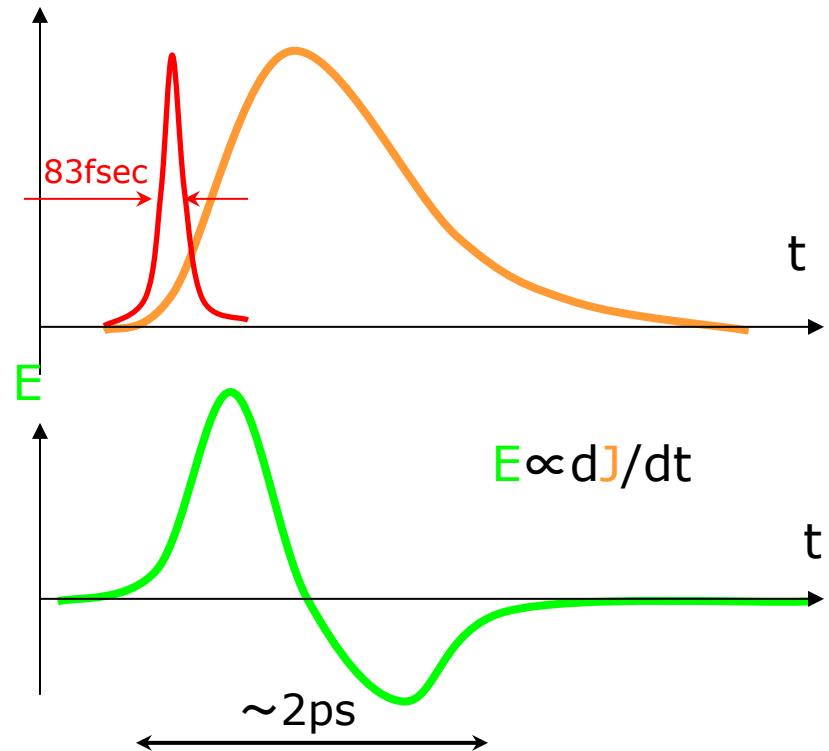


光キャリアは印加電圧により流れる

LT-GaAs(低温成長GaAs)

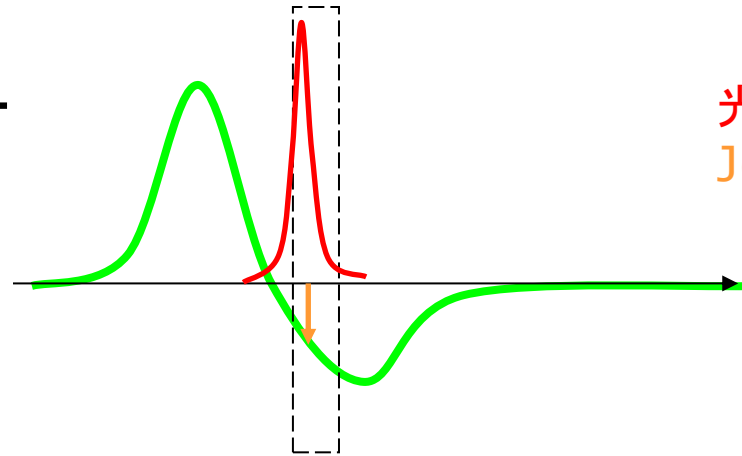
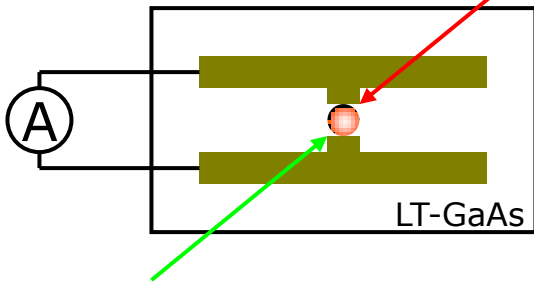


光パルス
J(光電流)

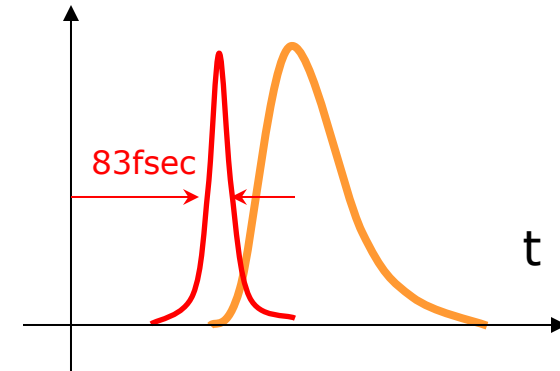


光伝導アンテナ：THz波検出

光伝導アンテナ



光キャリアはその時通過している
THz電場により流れる



検出素子は高速応答を必要とするため、
キャリア寿命がサブピコ秒程度の
LT-GaAsを用いる。

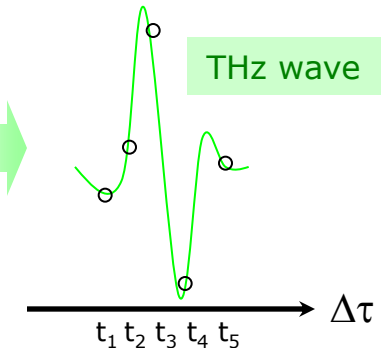
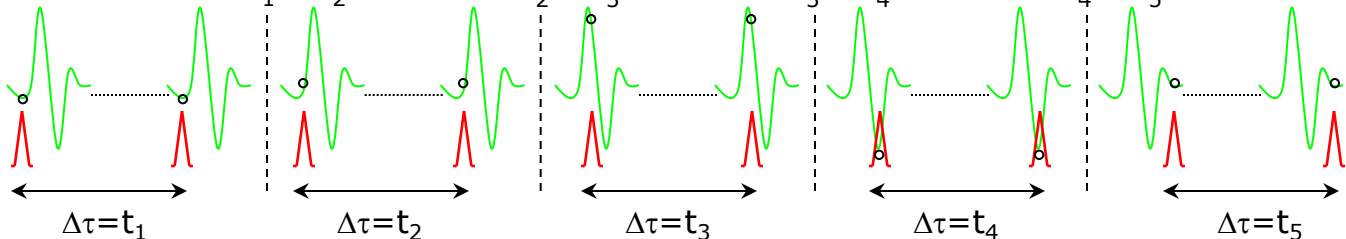
時間遅延を変える

$\Delta\tau = t_1 \rightarrow t_2$

$\Delta\tau = t_2 \rightarrow t_3$

$\Delta\tau = t_3 \rightarrow t_4$

$\Delta\tau = t_4 \rightarrow t_5$



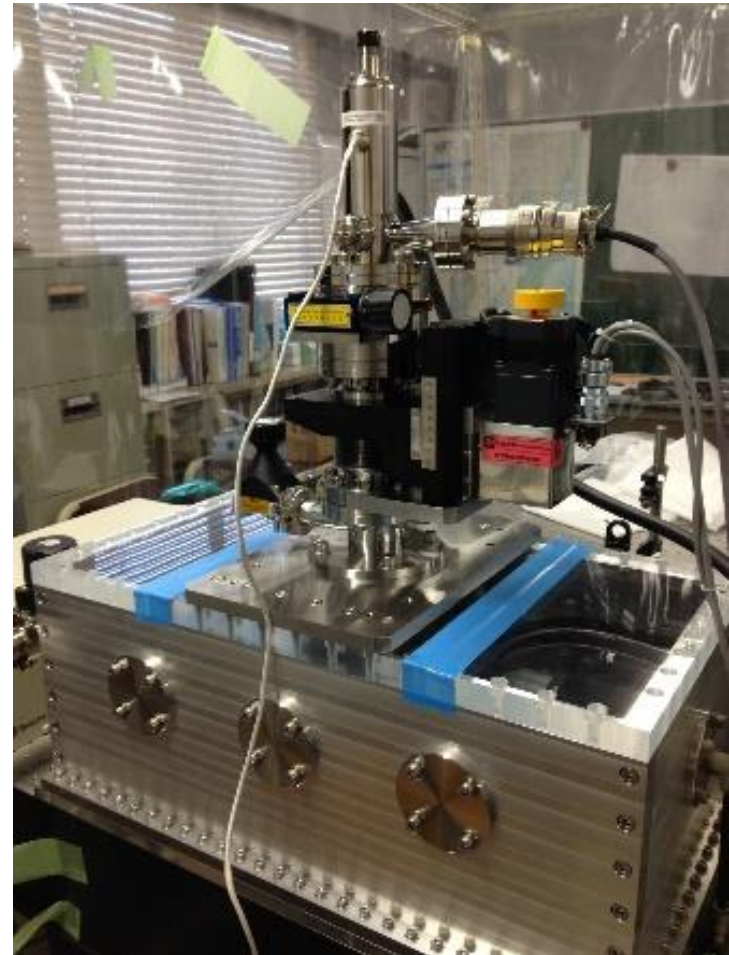
本研究室のTHz-TDSの特徴

- 極低温(約4K)～800Kまで連続温度変化が可能。
- 温度変化測定は全自動化されている(3日間ほど全自動測定が可能)。
- 高精度スペクトル取得の目的のため、遅延ステージやプログラムを改良。

↓

今後の改良点

- 液体試料測定機構を構築中。
- 反射型THz-TDSを構築中。



ADVANTEST CORP. 高速 THz-TDS

反射法

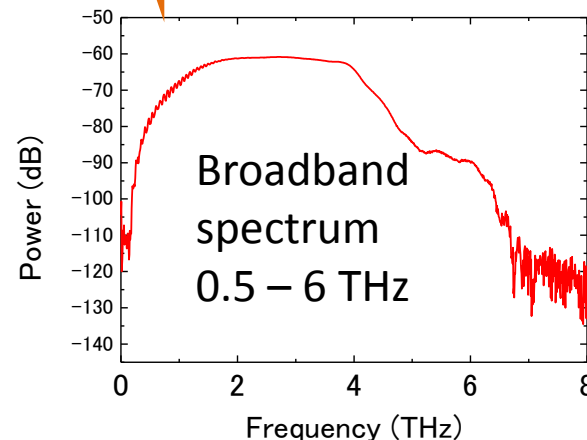
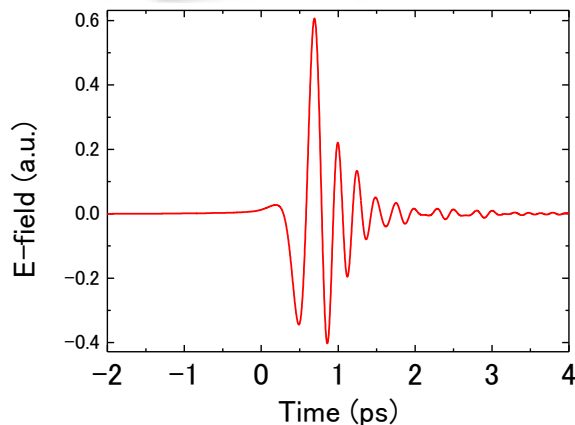
24

1 波形測定時間



8 ミリ秒 !

- ・反射法
- ・透過法
- ・ATR法 (Attenuated Total Reflectance)



透過法



ATR法



参加学会

国内:

- ・日本物理学会
- ・日本セラミックス協会
- ・応用物理学会
- ・高分子学会
- ・その他、専門の研究会

海外:

- IRMMW-THz、APS、PNCS、、、
- ・THz分光の最大の国際学会
- ・アメリカ物理学会
- ・ガラスの物理・応用の学会
- ・分子分光の国際会議