

# 論文審査の結果の要旨

氏名 宮越 達三

近年の情報通信網の急速な発展の中で、次世代超高速通信の中心技術のひとつとして、全光型スイッチングが注目されている。全光型スイッチングでは、電氣的スイッチングよりも高速なスイッチング動作を実現できる可能性がある。その用途に適した光学材料の特性は、三次の非線形光学定数  $\chi^{(3)}$  が大きいこと、及び、光励起状態が超高速に緩和することである。最近、二次元銅酸化物や一次元ハロゲン架橋ニッケル錯体といった低次元モット絶縁体の光学応答に関する研究が行われ、それらの物質が大きな  $\chi^{(3)}$  を持つこと、および、光励起状態の超高速緩和を示すことが見いだされた。これらの結果から、低次元モット絶縁体は、光スイッチング材料として有力な物質と期待されている。さらに、臭素架橋ニッケル錯体では、光照射によって、モット絶縁体が金属に転換する現象（光誘起絶縁体-金属転移）が高速に生じることが報告されている。これらのモット絶縁体では、電子間のクーロン反発により、各サイトに電子が一つずつ局在するために絶縁体となる。その電子構造は、通常バンド絶縁体とは本質的に異なるものであり、そのことがモット絶縁体の特異な光学応答に関係していると考えられている。実際に、大きな  $\chi^{(3)}$  の起源に関しては、実験、理論両面からその解明が進んできた。しかしながら、励起子や荷電キャリアの高速緩和の物理的機構については、ほとんど解明されていないのが現状である。本研究は、このような背景を踏まえ、典型的な低次元モット絶縁体であるハロゲン架橋ニッケル錯体と銅酸化物を対象として光励起状態の性質とその超高速緩和過程を詳細に調べ、それらの物理的機構を明らかにすることを目的としたものである。

本論文は5章からなる。第1章には、序論として、研究目的と論文の概要、研究の背景、および、本論文の構成が述べられている。研究の背景では、本研究に関連する光学応答の基礎事項の他、対象とするハロゲン架橋ニッケル錯体と銅酸化物に関する過去の研究が紹介されている。第2章には、試料の作成方法と本研究で使われた分光測定の方法が述べられている。第3章には、ハロゲン架橋ニッケル錯体の超高速光学応答に関する実験結果が示されている。まず、臭素架橋ニッケル錯体において、電荷移動吸収帯領域の過渡吸収分光の結果が示された。吸収変化は、超高速応答成分、約1ピコ秒の時定数で緩和する成分、誤差関数の応用関数で表されるやや遅い緩和成分の三成分でほぼ再現される。それらのスペクトル形状と時間特性から、各成分が、それぞれ、励起子に関するコヒーレント応答、実励起された励起子の緩和、実励起された荷電キャリアの緩和に起因することが明らかにされた。次に、塩素架橋ニッケル錯体において、赤外領域の過渡吸収分光の結果が示された。過渡吸収は、やはり三成分からなるが、それぞれが、励起子に関するコヒーレントな二光子吸収、格子緩和した励起子による二光子吸収、格

子緩和した荷電キャリア（ポーラロン）によるものであることが明らかとなった。これらの結果から、実励起された励起子の緩和が非常に高速であること、および、ポーラロン効果で荷電キャリアの緩和が遅くなることが結論された。第4章では、二次元銅酸化物において、電荷移動吸収帯領域から赤外領域にわたる広範囲の過渡吸収分光の結果が示された。その結果から、励起強度が高い場合は、モット絶縁体から金属への転移が生じることが明らかにされた。スペクトル形状とその時間変化の解析から、金属状態の緩和は極めて高速であり、キャリアはその数の減少にともなって局在して行き、ミッドギャップ状態を形成することが示された。局在したキャリアの緩和も非常に高速であり、数十フェムト秒の時定数で生じることがわかった。本章の最後で、第3章の結果を合わせて一次元モット絶縁体と二次元モット絶縁体の光励起状態の緩和ダイナミクスの比較が行われ、二次元モット絶縁体の緩和がより高速であり、それが、強相関電子系に特有のスピン-電荷結合によるものであることが指摘された。第5章には、本研究の総括が述べられている。

なお、第3章については、田尾祥一、前田充史、松崎弘幸、岡本博（東京大学）、大津英揮、長谷川美貴（青山大学）、高石慎也、山下正廣（東北大学）各氏との共同研究、第4章については、小林賢太郎、松崎弘幸、岡本博（東京大学）、澤彰仁（産総研）、川崎雅司（東北大）、十倉好紀（東京大学）各氏との共同研究であるが、いずれも論文提出者が主体となって研究を遂行したもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

以上から、本論文は、低次元モット絶縁体の超高速光学応答の機構解明とその光機能性材料としての新しい可能性の開拓に大きく貢献するものである。したがって、博士（科学）の学位を授与できると認める。