

論文審査の結果の要旨

氏名 上村紘崇

近年、光照射によって固体の電子構造や物性を制御しようという試みが、盛んに行われている。この現象は光誘起相転移と呼ばれており、光誘起絶縁体—金属転移、光誘起中性—イオン性転移、光誘起反強磁性—強磁性転移など、様々な現象が見出されている。これらの現象を機能として生かそうとする場合、光による物性変化をいかに高速に起こせるかが鍵になる。その点で注目されているのが、強相関電子系であり、遷移金属酸化物や有機電荷移動錯体がそれに属する。強相関電子系の特徴は、電子間の相互作用を通して、電子（スピン）系に集団的性質が現れることにある。この性質を利用すれば、光照射による電子励起やキャリア生成をきっかけとして、系の広い領域にわたって電子状態の高速変化を引き起こすことができると期待される。

本論文では、この様な発想に基づき、強相関電子系物質（電荷移動錯体およびマンガン酸化物）において光誘起相転移の超高速ダイナミクスを調べた結果が述べられている。これまでの光誘起相転移ダイナミクスの研究は、主に時間幅が 100 フェムト秒のレーザーパルスを用いて行われてきた。それらの測定では、時間分解能が十分でなく、電子の運動はもとより、分子変形や原子変位のダイナミクスを実時間検出することができない。そこで、本研究では、時間幅 15 から 30 フェムト秒の超短パルスレーザーを用いた時間分解分光測定を行い、電荷移動錯体およびマンガン酸化物が示す典型的な光誘起相転移において、電荷、分子、格子の超高速ダイナミクスを検出し、相転移の物理的機構を議論した。

本論文は7章からなる。第1章には、序論として、研究の背景と目的、論文の概要、および、論文の構成が述べられている。第2章には、試料作成と時間分解分光測定の方法が述べられている。

第3章では、アルカリ-tetracyanoquinodimethane (TCNQ) における光誘起スピンパイエルス相融解に関する結果が述べられている。時間分解能 40 フェムト秒の過渡反射測定により、K-TCNQ において、光照射によるスピンパイエルス相の不安定化に伴って7種の分子変位モードが誘起されることが示され、スピンパイエルス相の安定化にそれら7つのモードが関与していることが明らかにされた。また、相転移ダイナミクスの温度依存性と励起密度依存性を調べた結果、スピンパイエルス相の一次元的な性質や鎖間相互作用が相転移効率に強い影響を及ぼすことが示された。さらに、Na-TCNQ では、

強励起によって二量体変位が完全に消失することが明らかにされた。

第4章では、一次元モット絶縁体の光キャリアダイナミクスを、過渡反射測定によって調べた結果が述べられている。電子格子相互作用の大きさが異なる三種の電荷移動錯体について測定が行われ、電子格子相互作用が大きいほどキャリアがポーラロンとして局在し易いこと、二量体格子変形によってスピン-電荷分離の性質が破れることが明らかにされた。

第5章では、*tetrathiafulvalene-p-chloranil* における光誘起中性-イオン性転移のダイナミクスが述べられている。時間分解能 20 フェムト秒の過渡反射測定により、光照射によるイオン性ドメイン生成の初期過程が電子的な過程であることが示された。更に、ドメイン形成に引き続いて生じる分子変形と分子変位のダイナミクスが詳細に検出され、中性-イオン性転移における複雑なダイナミクスの全容が明らかにされた。

第6章では、マンガン酸化物における光誘起電荷秩序融解のダイナミクスが述べられている。典型物質である $\text{Pr}_{0.6}\text{Ca}_{0.4}\text{MnO}_3$ において、時間分解能 180 フェムト秒での過渡反射スペクトルと時間分解能 40 フェムト秒での反射率変化のダイナミクスが測定された。その結果、光励起直後に電子的に電荷秩序が融解した後、電荷秩序と強く結合していたヤーンテラー型の酸素変位が解放されることが示された。さらに、電荷秩序相における巨視的な電子構造の異方性が、光照射後どのように変化するかが示され、相転移の物理的機構が明らかにされた。

第7章では、本研究の総括が述べられている。

なお、第3章については、岡本博（東京大学）との共同研究、第4章については、前島展也氏（筑波大学）、米満賢治氏（分子研）、岡本博（東京大学）との共同研究、第5章については、岡本博（東京大学）との共同研究、第6章については、富岡泰秀氏（産総研）、十倉好紀氏（東京大学）、岡本博（東京大学）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、強相関電子系の光誘起相転移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。

以上1998字