

審査の結果の要旨

氏名 森本 剛史

レーザー技術の進歩によって、約 1 テラヘルツの周波数を持つ光を発生・検出することが可能になった。このテラヘルツ光は、位相安定なほぼ単一サイクルの電磁場パルスとして得られる。その電場振幅は数 100 kV/cm に増強することが可能であり、それを固体の電子状態制御に利用する試みも始まっている。更に高い電場振幅のパルスを得るには、中赤外光を使うのが有効である。しかし、位相安定な中赤外パルスを得る技術は確立されていない。以上の背景のもと、本研究では、位相安定なテラヘルツパルスおよび中赤外パルスを発生させ、それを固体に照射することによって、新しい機構に基づく電子相制御や相転移の実現を目指した。対象とした物質は、有機分子性結晶 TTF-CA (テトラチアフルバレン-パラクロラニル) である。この物質は、室温では中性のファンデルワールス結晶であるが、低温にすると TTF から CA に電子が一斉に移動してイオン性に転移する。イオン性相では、分子間電子移動によって巨視的な分極が生じており、典型的な電子型強誘電体となっている。本論文では、この系において、常誘電中性相におけるテラヘルツパルス励起による巨視的分極生成、及び、強誘電イオン性相における中赤外パルス励起による分極変調とイオン性—中性転移を実証し、その機構を解明した結果が述べられている。

本論文は 7 章からなる。第 1 章には、序論として、光誘起相転移の概説、テラヘルツ及び中赤外パルスによる電子相制御のためのサブサイクル分光が概説されている。

第 2 章には、実験方法及び試料の詳細が述べられている。

第 3 章には、対象とする TTF-CA の基礎的な物性が概説されている。

第 4 章には、TTF-CA の常誘電中性相におけるテラヘルツパルス励起による応答を調べた結果が述べられている。まず、テラヘルツポンプ—第二高調波プローブ分光によって、振幅が約 400 kV/cm の電場パルスを印加したとき、中性相にイオン性強誘電体相の 17% に至る大きな分極が生じることを示した。その起源を解明するために、テラヘルツポンプ—近赤外反射プローブ測定が行われた。分子間の電荷移動量に敏感な反射帯をプローブすることによって、この分極生成が、中性相中で揺らいでいる微小な一次元イオン性ドメインの応答によるものであることを示した。すなわち、電場に平行な双極子モーメントを持つドメインが拡大し、逆向きの双極子モーメントを持つドメインが縮小した結果、大きな分極が発生する。

第 5 章では、位相安定な中赤外パルスの発生とサブサイクル分光測定系の構築が述べられている。チタンサファイアレーザーの空気中でのフィラメンテーションを利用してパルスを広帯域化し、そのパルスを非線形結晶に入射することによって波長 10 ミクロンの位相安定な中赤外パルスを発生させた。時間幅 10 フェムト秒の可視パルスと組み合わせることによって、中赤外パルスの電場波形を測定することに成功した。最大電場は約 11 MV/cm に達する。

第 6 章では、開発した中赤外ポンプ—可視サブサイクルプローブ測定系を用いて、TTF-CA の強誘電イオン性相の応答を調べた。開発した中赤外光源は、分子間電子移動と結合した分子内対称振動モードに共鳴するため、そのモードの励起による電子状態変化

を反射分光により検出した。反射率変化には、電場波形にそった高周波の振動が観測された。これは、上記のモードを共鳴的に励振した結果、分子間電子移動が生じ、イオン性と中性が高速に入れ替わることに対応する。この過程で、一定の確率で長寿命を持つ中性ドメインが生成することがわかった。これは、振動励起によるイオン性—中性転移である。更に、中赤外パルスが振動モードを直接励起しない非共鳴の条件で、イオン性—中性転移の挙動が調べられた。この条件では、イオン性—中性転移の効率は閾值的挙動を示すが、それが量子トンネル過程によるものであることが提案された。

第7章には、本論文の総括が述べられている。

なお、第4章については、岡本博、宮本辰也、山川大路、寺重翼、小野貴晃、貴田徳明（東京大学）、第5章については、岡本博、園直樹、宮本辰也、貴田紀明（東京大学）、第6章については、岡本博、園直樹、宮本辰也、鈴木博貴、山川大路、貴田紀明（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、位相安定なテラヘルツおよび中赤外パルスを使った固体の電子相制御を実証した点、強い電場が得られる中赤外パルスを使うことによって、振動励起による相転移や量子トンネル過程による相転移など新しい機構による相転移を見出している点から、物性科学に大いに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1989字