

審査の結果の要旨

氏名 山川 大路

近年のフェムト秒レーザー技術の進歩によって、テラヘルツ領域のパルス光（テラヘルツ光）を発生・検出することが可能になり、それを物性研究へ利用しようという試みが盛んに成りつつある。テラヘルツ光は、位相が一定のほぼ単一サイクルの電場パルスとして得ることができる。そのため、高強度のテラヘルツ光を使えば、固体にサブピコ秒の時間だけ数 100 kV/cm の強電場を印加することが可能であり、それを物質の電子状態制御に利用する試みも開始されている。

本論文で対象とした物質は、ビスエチレンジチオテトラチアフルバレン (ET) 分子からなる分子性固体 (ET 塩) である。これらは、いずれも ET 分子からなる二次元的な強相関電子系を有している。本論文では、これらの系にテラヘルツ光ポンプ・フェムト秒広帯域反射・吸収プローブ分光法、および、第二高調波プローブ分光法を適用し、テラヘルツ光の電場成分による強誘電分極の変調、常誘電—強誘電転移、モット絶縁体—金属転移を実証するとともに、これらの電子相変化の物理的機構を解明した結果が述べられている。

本論文は6章からなる。第1章には、序論として、分子性固体の特徴、対象とする ET 塩の性質、先行研究、研究の目的と概要が述べられている。第2章には、試料の詳細、および、実験方法が述べられている。

第3章には、強誘電性を有する電荷秩序絶縁体である α 型 ET 塩において、テラヘルツ電場印加による電子状態変化を調べた結果が述べられている。テラヘルツ光ポンプ—第二高調波プローブ分光、および、テラヘルツ光ポンプ—反射プローブ分光の結果から、電場による分子間電荷移動によって強誘電分極が高速に変化することが実証された。また、電場による分極変化の直後から、分子変位とそのコヒーレントな振動が生じ、それによってさらに電荷分布と分極が大きく変調されることが示された。これは、この系の電子格子相互作用が非常に大きいことを示している。さらに、反射率変化の電場角度依存性を測定することによって、この系の分極が結晶軸に対して約 30 度傾いた方向を向いていること、その方向が分子間のトランスファーエネルギーの大きい方向に一致することを示した。これは、この系の分極が分子間電荷移動によって生じたことを明確に実証した初めての結果である。

第4章には、ダイマーモット型とよばれる ET 塩において、テラヘルツ電場によって、常誘電性のモット絶縁体から強誘電性の電荷秩序絶縁体への転移を誘起する研究が述べられている。テラヘルツ光ポンプ—第二高調波プローブ分光の結果から、テラヘルツ電場によって、この系に数ピコ秒の寿命を持つ巨視的な分極が生成されることが示された。さらに、テラヘルツ光ポンプ—反射プローブ分光の結果から、電場によってダイマーを形成する二分子間に電荷移動が生じ、それが分子変位によってさらに安定化することで常誘電—強誘電転移が起こることが明らかにされた。

第5章には、モット絶縁体相と金属相の相境界近傍に位置するモット絶縁体にテラヘルツ光を照射し、金属への転移を誘起した結果が述べられている。テラヘルツ光ポンプ—吸収プローブ分光の結果から、電場印加によって量子トンネル効果に起因するキャリア生成が起こること、それをきっかけとして金属化が生じることが明らかにされた。さらに、金

属化に要する時間が、分子間のトランスファーエネルギーに支配されることが示された。また、金属化の後、分子変位のコヒーレント振動が観測されたことから、モット絶縁体状態の安定化に分子変位が寄与していることが明らかにされた。

第6章には、本論文の総括が述べられている。

なお、第3章については、岡本博、宮本辰也、森本剛史、矢田祐之、木下雄斗、五月女真人、貴田徳明、森初果（東京大学）、山本薫（岡山理大）、岩野薫（KEK）、松本祐樹、渡辺秀治、下位幸弘（産総研）、須田理行、山本浩史（分子研）各氏、第4章については、岡本博、戸部光、宮本辰也、森本剛史、貴田徳明、鹿野田一司、宮川和也（東京大学）、須田理行、山本浩史（分子研）各氏、第5章については、岡本博、宮本辰也、森本剛史、寺重翼、矢田祐之、貴田徳明、鹿野田一司、宮川和也（東京大学）、須田理行、山本浩史（分子研）、加藤礼三（理研）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、テラヘルツ光を使って物質の電子相の高速制御を実証した点、テラヘルツ光を使うことによって物質の電子相を安定化させている電子間相互作用や電子格子相互作用に関する新しい知見が得られることを示した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1968字