

氏 名 矢 吹 亮 太 朗

学位（専攻分野） 博士(理学)

学 位 記 番 号 総研大甲第651号

学位授与の日付 平成15年3月24日

学位授与の要件 数物科学研究科 物質構造科学専攻

学位規則第4条第1項該当

学 位 論 文 題 目 光誘起相転移におけるパターン形成のダイナミクス

論 文 審 査 委 員

主 査 教授	門野 良典
教授	新井 正敏
教授	河田 洋
教授	那須 奎一郎
助教授	小出 常晴
教授	宮原 恒昱 (東京都立大学)

## 論文内容の要旨

近年、光によりその巨視的秩序状態をコントロールすることの出来る新たな物質が発見され、大変に注目を集めている。この現象は、絶縁性固体中に僅か数個の光子を入射することによって、数百サイトにも及ぶ励起ドメインを自己形成し、最終的に準安定な巨視的励起状態を形成するという顕著な非線型性を示す。しかも、光により誘起される新たな秩序状態は物質によって種々であり、誘電的、磁氣的及び、構造的な巨視的秩序が形成されることが実験によって確認されている。これらの光により誘起される巨視的秩序形成現象は、総じて「光誘起相転移 (Photoinduced phase transition: PIPT)」と呼ばれている。PIPTに共通する特徴として、相転移効率に対する励起光強度、波長の極めて非線型な依存性が挙げられる。特に、励起光強度依存性には閾値が存在し、ある強度を超えるまでは相転移が起こらない。一方、結晶に吸収される全エネルギーを同一にして、異なる波長の光を照射した場合を比較すると、その波長に依存して相転移が起こる場合と起こらない場合が存在することが確認されている。また、一部の金属錯体や有機ポリマーでは、2種類の波長の光によって、異なる2つの相が双方向的に切り替わる現象も報告されている。こうした特徴から、PIPTが起きる物質は非線型動力学の研究対象として興味深いだけでなく、その性質を利用した次世代記憶媒体等への応用も期待されている。このようにPIPTに関する多くの興味深い現象が次々と発見される反面、その非線型性をもたらす動力学的機構については、実験的にも、理論的にも未解決の問題が数多く残されている。理論的な側面について述べると、これまでの研究の多くは、格子振動を古典的に扱い、基底状態の断熱ポテンシャルのみを考慮するものであった。この方法は、ある程度の大きさのドメインが形成された後の系の振る舞いを調べるのには好都合であるが、PIPTの初期緩和動力学の研究には十分でない。なぜなら、光により生成された高い励起状態からの緩和過程においては、頻繁に非断熱遷移が起きるからである。つまり、その物質に巨視的多重安定性が備わっていたとしても、PIPTの成否は確率的に決まるのである。従って、初期緩和過程において励起状態が効率良く増殖・拡大する条件を明らかにすることが不可欠となる。そこで、我々は格子振動も含めて系の構成要素を演算子として扱い、量子的動力学計算に基づいてシミュレーションを行った。PIPTの初期緩和動力学の研究は溝内らによって始められ、彼らは1次元多励起子モデルを用いて相転移効率が光励起状態に極めて敏感に依存することを確かめた。しかし、彼らの理論は1次元系に留まった為、如何にして励起状態が増殖・拡大するかを示す空間パターンの時間発展については未だ明らかにはなっていない。そこで、我々は2次元系における空間パターンの形成過程をシミュレートした。更に、その特徴を数学的に定量化して解析することにより、励起子が効率的に増殖する条件を調べた。その結果、光励起後に生成された励起子は、その緩和過程の極めて初期の段階において励起子間相互作用の異方性を反映した特徴的空間パターン（樹状構造）を示すことが明らかになった。その後、励起子は樹状構造を埋めるように自己増殖し、最終的には塊状のパターンが形成されることが示された。更に、我々は異方性の強さに対する増殖効率の定量的な比較を行った。その結果、励起子間相互作用の異方性が効率的な励起子増殖の条件になることが明らかとなった。

## 論文の審査結果の要旨

縁性固体に僅か数個の可視光を照射しただけで、この固体内に基底状態とは全く異なる新しい構造秩序を有する巨視的励起状態のドメインが形成される。このような不思議な現象が最近幾つかの物質で次々と発見され、光誘起相転移として多くの研究者の注目を集めている。この問題に関する実験的・理論的研究の焦点は、最初は微視的規模に過ぎない光励起状態が如何にして巨視的規模に増殖拡大するのか、という巨視的秩序形成の機構を解明する事にある。

この増殖拡大機構を記述する理論として、最近溝内等は逐次世代交代近似を提案している。この理論では、巨視的励起ドメイン中の最も増殖が効率良く起きている微視的成長点（ドメインの端部）にのみに着目し、他を平均場で扱いながら成長点の増殖・緩和を計算する。そして増殖過程が完結した部分を次の過程で平均場に繰り入れ、その外側にできる新たな成長点の増殖・緩和過程を計算するという逐次計算により系の時間発展を記述する。溝内等はこの方法を擬一次元系に応用し、TTF-CA で実験的に観測されている初期条件敏感性を理論的に解明する事等の成功を納めた。しかし、光誘起相転移を示す物質には、二次元や三次元的物質も多く、これらの物質中での励起ドメインの空間的パターン形成とそのダイナミクスの問題は未解決のまま残されている。

この状況に鑑み、矢吹君は、溝内等の理論を二次元に拡張する事を試みた。二次元では励起子間の相互作用に空間的異方性が存在する場合もあり、計算は困難になるが、同君は非断熱的遷移の効果や、熱浴との相互作用の効果等、種々の数値計算上の難点を克服し、この理論を拡張する事に成功した。そして、この方法による計算を実行した結果、秩序形成は、急激な力学的緩和増殖過程と緩慢な量子的トンネル効果による増殖過程との二段階からなる事を初めて明らかにした。更に、励起子間相互作用が異方的な場合、力学的増殖過程では等方的な場合に比較してドメインの樹枝状パターンが効率良く形成され、又、その後の緩慢なトンネル過程でも、この樹枝状パターンの枝と枝との間を埋める形で効率良くドメインが形成されることを実験に先駆けて予言している。

以上、本論文により得られた知見は、専門的にも総合的にも極めて水準の高い研究であると認められる。従って、数物科学研究科物質構造科学専攻の博士学位論文としてふさわしい内容を持つと判断された。