岡本研究室の論文が日本物理学会欧文誌の注目論文 (Papers of Editors' Choice) に選出されました

「フェムト秒パルスレーザー光によって引き起こす超高速相転移」 Journal of the Physical Society of Japan Vol.75, No.12, p.123701 (2006)

我々の身の回りにある物質は、温度や圧力に応じて、気体、液体、固体のいずれかの状態をとる。また、固体においては、絶縁体、金属、常磁性体、反(強)磁性体など様々な状態を取りうる。相転移は、温度、圧力、磁場などの外場の変化によって、物質が異なる状態(相)に移る現象である。近年、固体の相転移を、光の照射、特に時間幅の非常に短いパルス光の照射によって引き起こそうとする試みが行われるようになり、物性物理・化学、光工学など広範な分野で注目を集めている。"光誘起相転移"と呼ばれるこの現象が多くの研究者の興味を引くのは、以下のような理由による。現在、外場として、我々が手にすることができる最も時間幅の短いパルスは光パルスであるが、最近のレーザー技術の進歩により、時間幅約 100 フェムト秒のパルス光(1 フェムト秒は 10⁻¹⁵秒)を比較的容易に得られるようになってきた。このような超短パルスレーザー光を利用した時間分解分光法を用いれば、結晶を構成する原子の振動周期よりも短いような極めて短時間の間に生じる電子、スピン、格子系の変化を検出し、光照射によって生じる相転移がどのように進行していくのかを精密に観測することができるようになる。その結果、定常測定では見ることができない相転移の本質を捉えることができるものと期待される。また、光照射によって、物性が瞬時に大きく変化し、ピコ秒(10⁻¹²秒)程度の時間で高速にもとの状態に回復するような物質は、テラビットクラスの高速・高繰り返し動作が可能な次世代の光スイッチング素子として利用できる可能性がある。このように、光誘起相転移は、基礎科学的な観点だけでなく、応用上の観点からも重要な現象である。

東京大学大学院新領域創成科学研究科の岡本 博教授、松崎弘幸助手らのグループは、ハロゲン架橋遷移金属錯体と呼ばれる一次元物質において、光誘起相転移の探索を行った。対象とした物質は、[Pd (chxn) 2Br] Br2 (chxn=シクロヘキサンジアミン)である。この物質は、遷移金属原子 (Pd) とハロゲン原子 (Br) が交互に並んだ一次元鎖からなっており、その一次元鎖が物性を支配している。ハロゲン架橋遷移金属錯体では、遷移金属原子をNiにすると、ハロゲンが金属間の中央に位置し、金属の価数が一様に 3 価である「モットハバード絶縁体相」となる。一方、遷移金属原子をPdあるいはPtにすると、ハロゲンが二倍周期で金属の方に変位し、金属の価数が 2 価と 4 価を交互に繰り返す「電荷密度波相」となる。しかしながら、これまで、これら二つの相間の相転移が観測された例はない。[Pd (chxn) 2Br] Br2 は、電荷密度波相であるが、両相の境界近傍に位置する物質である。本研究では、時間幅 130 フェムト秒の超短パルスレーザー光を照射することによって、初めて「電荷密度波相」から「モットハバード絶縁体相」への超高速相転移を実現することに成功した。

図 1(1) は、 $[Pd(chxn)_2Br]Br_2$ に超短パルスレーザー光を照射した際に観測された光反射率の変化量の時間変化である。レーザー光照射後、測定系の時間分解能(180 フェムト秒)よりも短い時間で反射率が増加し、その後、約 360 フェムト秒の周期を持つ明瞭な振動が観測された(図 1(2))。これは、レーザー光照射によって、瞬時に金属の価数が広い領域にわたって 3 価となってモットハバード絶縁体相に転移し、それに引き続いて二倍周期で変位していたBr原子が、位相を揃えて一斉に変位を解放する方向の振動(コヒーレント振動)を始めたことを示している(図 2)。

本研究の結果の最も重要な点は、「電荷密度波相」から「モットハバード絶縁体相」への相転移が極めて高速に生じていることであり、これには、隣接する Pd 原子の 4d 電子間のクーロン斥力が重要な役割

を果たしていると考えられる。今回の成果は、超高速かつ高効率な光誘起相転移の実現に向けた研究の 発展に大きく貢献するものと期待される。

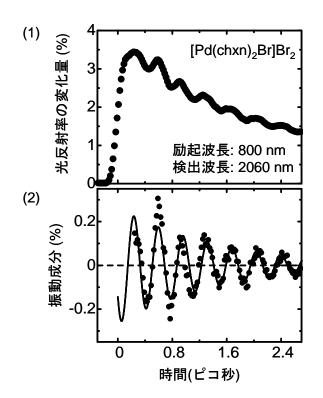


図 1

(1) $[Pd(chxn)_2Br]Br_2$ における光反射率の変化量の時間変化、(2) (1)から抽出した振動成分(黒丸)。 実線は、減衰振動によるフィッティング結果。

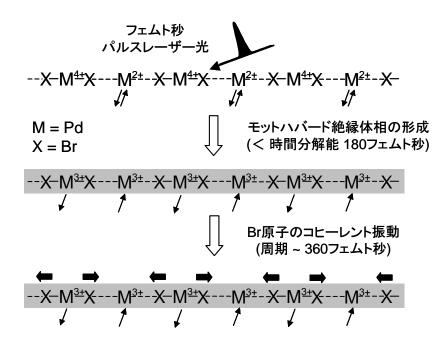


図 2

電荷密度波相からモットハバ ード絶縁体相への光誘起相転 移の様子を模式的に示した。 図中で、細い矢印はスピンを 表す。