

非平衡協力現象の解明と物質開発に向けた フェムト秒パルス放射光源への期待

東工大物質科学・神奈川科学技術アカデミー(KAST) 腰原伸也

光によって物質を高効率で変化させたり、逆に変化の情報を光に再び移しかえることは、今日の光物質科学の最も基本的な課題の一つと考えられる。我々は、一つの光子できわめて多数の電子や分子が変化する、いわば、微弱な光励起によって相転移（光誘起協力現象、光誘起相転移）を起こしてしまうような物質の発見と現象の特徴の追求を目指した研究をこの15年間継続して行ってきた。そしてその過程で、光によって引き起こされる構造変化が、光誘起相転移にともなう物性の変化や、その変化の時間スケールの決定にとって大変重要な役割を果たしていることに気が付くに至った。これは、局所的な光励起状態から巨視的な物質相変化に至る緩和過程に、物質に内在する共同的な電子-格子相互作用が活躍しているためと考えられる。言い換えれば、基底状態の研究において「黄金律」であった「構造と物性」という関係が、光励起状態という非平衡条件下の物質科学においても、やはり重要であることを示している。

このような動的・過度的な物質構造を捕らえるためには、原子間距離程度の波長を持った、短パルス光源の存在、さらには外部レーザー等の他の光源との組み合わせ利用が必要不可欠である。我々もこのような組み合わせ実験系の建設に取り組んできた経緯もあり(Rev. Sci. Instrum. 60 (1989) 1569)、この5年間は、フランス・レンヌ大学、ESRF(ID09)、ポーランド・ブラツワフ工科大学と共同で、ピコ秒時間分解構造解析の実験に取り組んできた。その結果、光誘起相転移系を題材として、分子映画撮影装置とも呼べる、この種の新光源の有効性をデモンストレートする実験結果を得ることに成功したので、報告する。

本講演で取り上げる題材は、電荷移動錯体 TTF-CA における光誘起中性-イオン性相転移（共同的電荷移動）である。TTF-CA 結晶は、電荷移動度の大きなイオン性相（低温相）と、電荷移動度の小さな中性相（高温相）の間を転移する、中性-イオン性相転移を示すことで有名な物質である。また、低温相においては格子に2量体化歪みが生ずることで強誘電体となっている点も、本物質の大きな特徴である（図1参照）。我々は、パルス幅100フェムト秒のレーザー光励起によって、この中性-イオン性相転移を可逆に引き起こすことができることを報告して来た。またその協同的電荷移動ダイナミクスは2-400ps以内で完了することも最近の研究によって明らかとなりつつある(S. Koshihara et al. J. Phys. Chem. B 103 (1999) 2592, S. Iwai et al. Phys. Rev. Lett. 88 (2002) 57402 等)。この転移に伴う格子構造変化のダイナミクスを明かにすることは、光誘起中性-イオン性転移の発現機構の解明、さらには光誘電、光磁性物質開発のために必要不可欠である。そこで我々は、SORからのパルス単色X線とフェムト秒レーザーを組み合わせたシステムを用いて、中性-イオン性相転移過程におけ

る構造変化を追跡する実験を行い、構造変化の追跡に成功した。その結果の1例を図2に示す。当日は、最新の結果等について、時間分解SHG法等の測定結果も合わせて報告する。これに加えて、最近始まった量子常誘電体とその光誘起効果の研究においては、これら新光源の果たす役割が非常に重要となると考えられる。その点に付いても、最新の成果を交えて報告を行う。

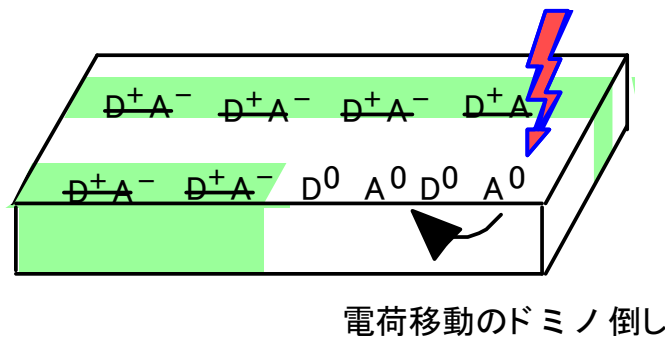


図1：電荷移動錯体における、光励起をきっかけとする共同的電荷移動現象（光誘起中性-イオン性転移）の模式図。

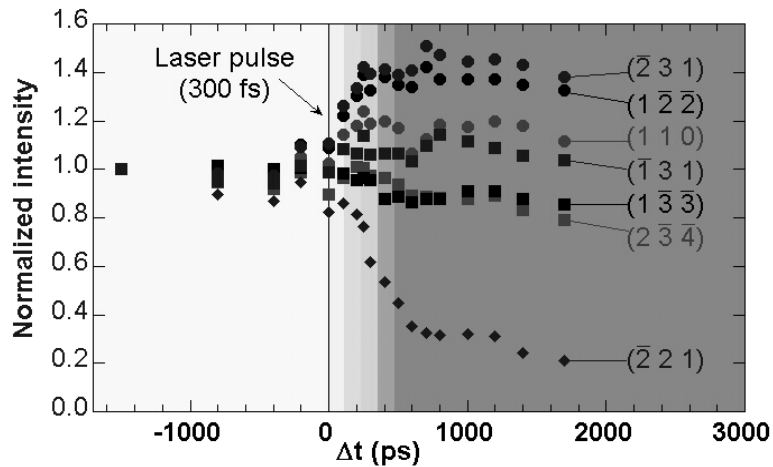


図2：光誘起中性-イオン性転移に伴う、結晶構造変化のダイナミクス。