光誘起ドミノ倒し過程の理論

小川 哲生・越野 和樹*

大阪大学大学院理学研究科 〒 560 0043 大阪府豊中市待兼山町11 1 *理化学研究所フロンティア研究システム 〒 351 0198 埼玉県和光市広沢21

(2002年8月1日受理)

Theory of Photoinduced Domino Processes

Tetsuo OGAWA and Kazuki KOSHINO*

Department of Physics, Osaka University, Toyonaka, Osaka 560 0043 *FRS, RIKEN, Wako, Saitama 351 0198

(Received August 1, 2002)

Photoinduced phase transitions via excited electronic states are discussed theoretically using a one-dimensional model composed of localized electrons and lattices under the adiabatic or diabatic approximation. We show that the global phase change by photoexcitation only at a site is possible, and we clarify conditions for the occurrence of such phenomena. In the adiabatic regime, depending on the intersite interaction, an initial local photoinduced change (i) remains locally, (ii) induces cooperatively a global phase change, or (iii) disappears and the system returns to the initial phase. Dynamical features of the case (ii) are characterized by the "deterministic domino" processes of the domain walls; the domain walls between the two phases move deterministically with a constant velocity without spontaneous emissions. In the diabatic regime, similar three types of photoinduced change are possible. The domain-wall dynamics is described as the "stochastic domino" process with a random velocity, which is accompanied by the successive radiative transitions. Related topics of the photoinduced domino theory are also introduced.

1.はじめに

相転移とは,広い意味で,ある物質相(初期相)から 他の物質相(終期相)への劇的な変化を示す現象である。 その劇的変化を引き起こす「きっかけ」が,温度変化や 圧力変化ではなく光照射であるような光誘起相転移現象 に関心が集まっている。ポリジアセチレン結晶や2価鉄 ピコリルアミン(スピン クロスオーバー)錯体,有機 電荷移動錯体などで観測されている光誘起相転移現象で は,結晶構造変化・電子構造変化・スピン(磁性)状態 変化を伴う局所微視的な光励起領域(ドメイン)が,光 照射という外界からの「刺激」によって生成され,電子 相関や電子(スピン)格子相互作用などを通した協力現 象によって,それらが物質全体に広がった大域巨視的な 領域に移り変わっていく過程が面白い^{1,2})。これらは非 平衡相転移[†]ダイナミクスの典型例である。光誘起相転 移の機構や時空間ダイナミクスに関する実験データの蓄 積が進む一方,それらの実験事実から現象の本質や「物 理」を暴き出すためには,非平衡光誘起相転移の理論モ デルが微視的・現象論的両側面から不可欠である。

「初期相から終期相へ」の光誘起転移には、(a)準安 定相から絶対安定相へ、(b)絶対安定相から準安定相へ の2通りの方向がある。前者(a)は、パルス的な光励 起をきっかけとして、エネルギー的に高い状態(準安定 状態)から、ポテンシャルバリアを越えることにより、 エネルギーを散逸しながら、より低いエネルギーの絶対 安定状態へ遷移するエネルギー散逸型過程である。後者

E-mail: ogawa@mailaps.org

非平衡相転移という言葉には二重の意味がある。「非平衡状態を《経由して》生じる相転移」と「非平衡状態《において》 生じる相転移」である。その「非平衡状態」にも様々なもの が考えられるが、本論文では、光によって作られた非平衡状態に着目し、光励起状態を経由して、ある相から別の相に転 移する現象に焦点を絞る。

(b)は、外界から連続的に光エネルギーを注入されなが ら、準安定相を過渡的に生成するエネルギー注入型過程 である。この両者の転移ダイナミクスは大きく異なるこ とも知られている。表題の「光誘起ドミノ倒し」は、前 者の(a)に属す。

パルス光照射によって「準安定相 絶対安定相」なる 相転移が引き起こされる過程は,次のように考えられて いる。光照射前は,物質は一様な準安定状態にある。光 照射により物質内の電子等が励起状態に遷移し,物質中 に1つあるいは複数の局所的な変化がこの電子励起に起 因して誘起される。光照射を止めた後、光によって生じ た局所的変化が,物質中の電子や結晶格子間の協力効果 (相互作用)によって,結晶全体にわたる大域的変化に 成長する。結晶全体が変化し終わって,光照射前とは異 なる一様状態に落ち着き,光誘起相転移が完了する。こ こで紹介する理論は,光励起状態を経由して生じるエネ ルギー散逸型相転移現象がどのような条件下で生じうる のか,また,その時間発展過程はどのようなものかを明 らかにし,特に,たった1か所(1分子や1単位格子) の構造が光誘起変化するだけで,結晶全体にその効果が ドミノ倒しのように伝播拡大していく現象の発現条件を 得ることを目的とする。光誘起ドミノ倒し理論は、光励 起直後の光誘起相転移の初期過程,すなわち光誘起核生 成過程を記述する理論である。よって,ある程度の大き さまで成長した光励起ドメインや相変化したドメインの 融合や分裂過程³は扱わない。

光誘起相転移は協力現象であることを,ここであらた めて強調したい。光照射などの外界からの刺激に対して 微視的あるいは巨視的に構造が変化する物質は数多く存 在する。これらの中で,構造変化したサイト(分子や結 晶中の単位格子など)の数と光の照射強度とが比例関係 にあるような物質では,各サイトは互いに独立であると 見なせ,巨視的な構造転移を微視的な構造変化の《線形 和》として理解できる。これは相転移ではない。つまり, 相転移現象は,電子相関や電子 格子相互作用などを通 じたサイト間相互作用が本質的で,なんらかの非線形応 答を示す協力現象⁴⁻⁶⁾である。それゆえ,光照射によっ て引き起こされたほんの少数の局所的な構造変化が,大 域的なものへと自発的に成長しうる可能性がある⁷⁻⁹⁾。

2.1次元局在電子 格子モデル

光励起状態を経由する相転移には,光照射によって結 晶構造やユニットセル構造が変化する光誘起構造相転移 の例が多い¹⁰)。そこで,光励起「構造」相転移を,最も 簡単なモデルの1つ,2つの電子準位をもつ局在電子と 古典的格子からなる一次元鎖モデルを用いて解析しよ う^{11,12}。*j*番目のサイトの電子状態は |1 ;と |2 ;との 重ね合わせで書かれるものとし、この系を記述するハミ ルトニアンは、無次元化の後、 $H = \sum_{j} H_{j} + H_{int}$ となる。 ここで、 H_{j} は、*j*番目のサイトの電子格子ハミルトニ アン、 H_{int} は、格子歪み間の結合を表す相互作用ハミル トニアンで、それぞれ、

$$H_{j} = \begin{bmatrix} \varepsilon^{d} (u_{j}) + p_{j}^{2} & t \\ t & \varepsilon^{d} (u_{j}) + p_{j}^{2} \end{bmatrix}$$
(1)

$$H_{\text{int}} = \sum_{i>i} k_{ij} (u_{i} - u_{j})^{2}$$
 (2)

で表される。j番目のサイトの透熱ポテンシャルは,

 $\varepsilon^{d}(u_{j}) = u_{j}^{2} - 2 \gamma u_{j} + \varepsilon, \varepsilon^{d}(u_{j}) = u_{j}^{2} + 2 u_{j}$ (3) であり, Fig. 1 の実線で表される。ここで, u_{j} は j 番目 のサイトの格子歪み, $p_{j} = u_{j}/\tau$ は j 番目のサイトの 格子運動量, k_{ij} は格子歪み間の相互作用係数, ε は $u_{j} =$ 0 における |1_j と |2_j とのエネルギー差, t はそれら の間の重なり積分, γ は電子と格子の結合定数, τ は格 子振動の特徴的時間 τ_{vib} で規格化した時間である。さら に,系は外界(熱浴)と接しているとする。この系に, 2 種類の準古典近似(断熱近似と透熱近似)を別々に適 用した計算結果を以下に紹介する。断熱近似(透熱近似) の適用可能条件は,重なり積分 t と Huang-Rhys 因子 S とを用いて, $t \gg S^{-1/2}$ ($t \ll S^{-1/2}$)である¹³。すなわち, 電子の運動に対して格子の運動が遅い(速い)場合に, 断熱近似(透熱近似)が使える。

3. 単一サイトの光誘起ダイナミクス

まず,サイト間の相互作用がない場合を考え,単一サ イトのみのダイナミクスを概観する。単一サイトの運動 は,単一サイトハミルトニアン H₂ で記述されるが,例 として断熱近似の場合を考えよう。この場合,格子の断 熱的運動と電子の基底状態と励起状態との間の電子遷移 という2つの過程が存在する。格子に対する断熱ポテン シャルは,H₂を対角化して,

$$\varepsilon_{\pm}^{a}(u_{j}) = u_{j}^{2} + (1 - \gamma)u_{j} + \frac{\varepsilon}{2} \pm \sqrt{\left\{\frac{\varepsilon}{2} - (1 + \gamma)u_{j}\right\}^{2} + t^{2}}$$
(4)

で与えられる。符号は電子状態に従って選ぶ。この断熱 ポテンシャルを Fig. 1 の破線で示した。パラメータε,γ, t を適当に選ぶと,ε⁴. に 2 つの極小点が存在し,系は二 重安定系になる。Fig. 1 の挿入図には, ε⁴./ u_j=0を 満たす4 つの局所構造(格子位置)A,B,C,Dが示 されているが,これらの構造のうち,AとBは絶対零 度において安定(ただしAには量子力学的な寿命があ る),Cは不安定,Dは光子の自然放出による有限の寿 命 τ_{SE}を持つ。今の場合,Aが準安定構造,Bが絶対安 小川哲生・越野和樹



Fig. 1 Local diabatic potentials \mathcal{E}_{+2}^{d} (solid curves) and local adiabatic potentials \mathcal{E}_{\pm}^{a} (broken curves) as a function of the lattice distortion u_{j} in the *j*th unit cell. Here u_{X} is the position of a crossing point of the diabatic potentials. Inset: The local adiabatic potential $\mathcal{E}_{\pm}^{a}(u_{j})$ for the $\mathcal{E} < 0$ case. Here u_{A} and u_{B} (u_{C}) are the position of the local minima (maximum) of $\mathcal{E}_{\pm}^{a}(u_{j})$, and u_{D} is the position of the local minimum of $\mathcal{E}_{\pm}^{a}(u_{j})$. The upward (downward) arrow represents the electronic transition with absorption (emission) of a photon. $\Delta \mathcal{E}_{AC}^{a} = \mathcal{E}_{\pm}^{a}(u_{C}) - \mathcal{E}_{\pm}^{a}(u_{A})$ is the potential barrier.

定構造である。基底状態と励起状態との間の電子遷移は, 光子の吸収と放出を伴って起こるが,Franck-Condonの 原理によれば,電子遷移が生じている間の格子の運動は 無視できるので,電子遷移はFig.1挿入図中の垂直な線 で表現される。この電子遷移を起こすために必要な光子 のエネルギーは,点Aと点Aとのエネルギー差以上(あ るいは同程度)でなければならない。格子の古典的運動 方程式は, $u_i = - \varepsilon_{\perp}^*(u_i)/u_i - \Gamma u_i + \eta(\tau)$ で与えられ る。ここで Γ は摩擦係数, η_i は格子に働く熱揺動力で ある。本論文での考察は,摩擦が強い場合(Γ が大きい) に限定し,格子の振動運動は直ちに減衰し格子緩和状態 に速やかに落ち着くとする。

準安定構造 A から安定構造 B への間の構造変化の光 学的過程を考える。A 構造にあるサイトが光子を吸収し た場合, Fig. 1 挿入図中で, A A D D B という 経路を経て B 構造に転移する。ここで, は,電子の 基底/励起状態間の遷移で,光子の吸収や放出を伴う。 通常,格子緩和 A D やD B に要する時間スケール τ_{vb} は,光子の自然放出に要する時間スケール τ_{se} に比 べて十分小さい。

なお,AからBへの間の構造変化には,光学的過程

の他に,熱的過程と量子的過程とがある。熱的過程は, 有限温度での熱揺動力 η ,によって誘起され,格子がポ テンシャル障壁 $\Delta \varepsilon_{\rm Ac}^{*}$ を乗り越える位に大きな揺動力を 受けた場合に,A C Bという経路を通って構造転移 が起こる。量子的過程は,格子の量子揺らぎによって誘 起される。この過程は,A構造にある格子が,ポテンシ ャル障壁をトンネル効果によりくぐり抜けるものと考え られ,熱的過程とは異なり絶対零度でも起こり得る過程 である。

4.光誘起ドミノ倒し過程

格子歪み間相互作用を取り入れよう。相互作用係数 k_{ij} として,強さ $k \geq \nu \vee \vee \vee$ (相互作用の到達距離) μ の2 つで特徴付けされる形 $k_{ij} = k_n = \frac{1}{2}k(1 - e^{-1/\mu})\exp[-(n - 1)/\mu]$ を考える。ここでn = |i - j|はサイト間の距離で ある。以下では光誘起過程のみに注目するために,格子 温度が絶対零度と仮定し,さらに量子的過程も考慮しな い。また,最も単純でかつ最も非線形性の強い場合とし て,1つの光子がたった1つのサイト(j = 0番目とする) で吸収される場合について議論する^{14,15}。つまり,結晶 中のどこか1つのサイトで1光子吸収が生じればよいの で,照射する光強度については弱励起極限に相当する。

4.1 断熱レジーム:決定論的ドミノ倒し

まず最初に,断熱レジーム($t \gg S^{-1/2}$)を考察する。 初期条件として,系のすべてのサイトがA相(準安定 状態)にあった場合を考える。時刻 $\tau = 0$ で光子が吸収 され,0番目のサイトの電子のみが励起状態になった。 $0 < \tau < \tau_{SE}$ での各サイトの格子の運動は運動方程式 $\ddot{u}_{j} = -E({u_{j}})/u_{j} - \Gamma\dot{u}_{j}$ に従う。ここで, E^{a} は励起状 態の全断熱ポテンシャル

$$E^{*}(\{u_{j}\}) = \mathcal{E}^{a}_{+}(u_{0}) + \sum_{j \in O} \mathcal{E}^{a}_{-}(u_{j}) + \sum_{i>j} k_{j}(u_{i} - u_{j})^{*} \quad (5)$$

である。D 点からの自然放出が生じる直前の格子歪み { *u*_i } の形を, **Fig. 2**の×点で示した。

引き続き,時刻 $\tau = \tau_{SE}$ における自然放出から格子の



Fig. 2 Real-space configuration (snapshot) of the structural change after one-site excitation with the single-site parameters $\varepsilon = -0.5$, $\gamma = 1$, and t = 1.1. The interaction range is chosen to be $\mu = 0.5$, the interaction strength (a) k = 0.05, (b) k = 0.2, (c) k = 0.5, and the friction $\Gamma = 1$ (large Γ). The relaxed positions just before the spontaneous emission are plotted by crosses and the configurations after the spontaneous emission ($\tau = \tau_{SE} + 50$) by open circles. In (a) and (c), there are no further temporal evolution.

運動は再開する。 $\tau > \tau_{SE}$ での各サイトの運動方程式は $\ddot{u}_i = - E_{0}^{i} \{ u_i \}) | u_i - \Gamma \dot{u}_i$ であり,

$$E_{0}^{*}(\{u_{j}\}) = \sum_{j} \varepsilon_{-}^{*}(u_{j}) + \sum_{i>j} k_{i}(u_{i} - u_{j})^{2} \qquad (6)$$

は基底状態の全断熱ポテンシャルである。サイト間相互 作用に依存して,光子自然放出後の時間発展に次の3つ の場合がある。なお,それぞれの場合の格子歪みの形を, Fig.2の 点で示した。

Ⅰ°:「凍結した局所歪み」:0番目のサイトだけが自然 放出後に B構造に転移する,

II:「光誘起ドミノ倒し」:全てのサイトが B構造に 転移する,

III^a:「復元」:全てのサイトがA構造にもどる。

単ーサイトパラメータ ε , γ , tを固定して, (μ , k) 平面上での相図を Fig. 3 (a) に描いた。この相図の特 徴は,以下のように定性的に理解される。相互作用が弱 い極限k0 では,各サイトはほぼ独立に振舞うため, 光子を吸収した0番目のサイトだけがA構造からB構 造に転移する。それゆえ, I^a相は小さなkの領域に現わ



Fig. 3 (a) Phase diagram on the (μ, k) plane in the adiabatic regime with the single-site parameters $\varepsilon = -0.5$, $\gamma = 1$, t = 1.1, and the friction $\Gamma = 1$ (large Γ). (b) The phase diagram on the (μ, k) plane in the diabatic regime with the single-site parameters $\varepsilon = -3$, $\gamma = 1$, t = 0, and $\Gamma = 1$.



Fig. 4 Domino motion of the sites as a function of time τ in the adiabatic regime for $\varepsilon = -0.5$, $\gamma = 1$, t = 1.1, k = 0.2, $\mu = 0$, and $\Gamma = 1$ (large Γ). The spontaneous-emission lifetime τ_{SE} is set to be 20.

れる。一方,相互作用が強い極限k >> 1では,光子を 吸収したサイトでさえも,弾性エネルギーの損のために (周りのサイトに引っ張り戻されて)B構造に歪むこと ができない。この場合には全てのサイトはA構造にも どる。それゆえ,III[®]相は大きなkの領域に現われる。 光誘起ドミノ倒し過程はII[®]相で生じ,中間的な相互作 用強さkと短距離相互作用($\mu \sim 0$)で発現する。この 領域では,大域的な構造転移が,たった1つのサイトに よる光子の吸収によって引き起こされるため,極めて大 きな「非線形性」を示す。このII[®]相が存在するのは, 単一サイトのパラメータ ε , γ ,tを適切にとった場合に 限られる。A,B両構造間のポテンシャル障壁が低く, 両構造間のエネルギー差が大きな場合,すなわち,準安 定構造が壊れ易い場合である。

格子の運動の時間発展を Fig.4 に示す。これからわか るように,この II^a相では,AB 相間のドメイン境界壁 は決定論的方程式⁺⁺に従ってほぼ一定速度で運動する。 すなわち,ドミノは等速で倒れていく。よって,「決定 論的ドミノ倒し過程」と呼ばれる。「プラトー」領域(*u* の時間変化が遅い時間領域)が存在するが,これは,た とえば*u*1が*u*0によって+方向に引っ張られる力と,*u*2, *u*3などによって - 方向に引っ張られる力とがほとんど 釣り合っている状況に相当し,*u*1がポテンシャルバリ アをゆっくりと越えているために,プラトーのように見 える。詳細は文献¹²を参照。また,*u*0の初期に見られる 振動は,励起状態の全断熱ポテンシャル上での,Fig.1 挿入図中の点D 近傍での格子振動である。 透熱レジーム($t \ll S^{-1/2}$)での格子緩和機構は,断熱 レジームと異なる。同一の透熱ポテンシャル上 $\varepsilon^{d}(\varepsilon^{d_2})$ 上であっても, $\varepsilon^{d}(\varepsilon^{d_1})$ とのエネルギー大小関係によっ て,電子状態は高エネルギー状態になったり低エネルギ ー状態になったりする。つまり,この電子状態の移り変 わりは,格子歪み量と2つの透熱ポテンシャルの交点uxとの位置関係で決まる。

時刻 τ = 0 で 0 番目のサイトが光励起されたら,それ 以降の時刻での各サイトの格子運動は,励起状態の全透 熱ポテンシャル

$$E^{d}(\{u_{j}\}) = \varepsilon^{d}(u_{0}) + \sum_{j \in (0)} \varepsilon^{d}(u_{j}) + \sum_{i>j} k_{i}(u_{i} - u_{j})^{2} \quad (7)$$

に従い,或る格子緩和配置 { \dot{u}_{i}^{4} } に落ち着く。この状態 以降の運動が重要である。この状態が輻射緩和するか否 かは,緩和した格子歪み \dot{u}_{i}^{d} と u_{x} との大小で決まる。こ れには,サイト間相互作用の強度に依存して, I^{4} , II^{4} , IIf^{4} ,IIf

I⁴ 領域では, すべてのサイトの電子は低エネルギー状 態にあるため, いずれのサイトでも自然放出を伴う輻射 緩和は生じない。光励起された0番目のサイトのみがB 構造に転移し,他のサイトはA構造付近で止まってし まう(「凍結した局所歪み」)。III⁴ 領域では,0番目のサ イトのみが高エネルギー電子状態となり,自然放出とと もに輻射緩和するが,A構造に戻ってしまう。結局,全 てのサイトはA構造に戻る(「復元」)。

II⁴ 領域では,0番目のサイトがB構造に転移する際, 隣の±1番目のサイトをuxを横切る位置まで引っ張り, 両隣のサイトが高エネルギー電子状態になる。これらの ±1番目のサイトは, τse 程度の時間の後,光子の自然 放出をして低エネルギー電子状態に輻射緩和してB構 造に転移する。さらに逐次的に±2番目のサイトが引っ 張られ,自然放出してB構造に移る。これらの過程が 逐次生じて,全てのサイトがB構造に転移する(「光誘 起ドミノ倒し」)。ただし,決定論的ドミノ倒し過程と異 なるのは,各サイトがB構造に移る際に,必ず光子の 自然放出を伴う点である。自然放出は確率過程なので, ドミノが倒れるのに要する時間が確率的になり一定では なくなる。よって,絶対零度であっても,ドメイン境界 壁の運動は確率過程となり不規則な速度で進行するた

⁺⁺ 絶対零度を考えているので,熱揺動力は無い。

Table 1Comparison between the domino dynamics in the adiabatic and di-
abatic regimes after photoexcitation of the zeroth (j = 0) site. Here
N is the total number of the sites.

	Adiabatic regime	Diabatic regime
Condition	$t >> S^{-1/2}$	$t << S^{-1/2}$
Region	Π^{a}	Π^d
Spontaneous emission at $j = 0$	Occur	None
Spontaneous emission at $j = 0$	None	Occur
Total number of emitted photons	1	N - 1
Domino dynamics of the domain wall	Deterministic	Stochastic
Time scale of the domino motion	$ au_{\mathrm{vib}} \sim 10^{0^{-1}}$	$\tau_{\rm SE} \sim 10^{4-5}$

め、「確率的ドミノ倒し過程」と呼ばれる。

以上のように,適当なサイト間相互作用があれば,断 熱描像の下でも透熱描像の下でも,1サイトを光励起し ただけで,ドメイン境界のドミノ倒しダイナミクスが生 じ,その発現条件が明らかになった。両者の比較をTable 1 にまとめた。

5.様々な光誘起ドミノ倒し過程

上述した2種類の光誘起ドミノ倒し過程の他に,別種 の光誘起ドミノ倒し過程が様々な角度から研究されてい る。そのいくつかを列挙する。

5.1 摩擦が弱い場合のドミノ倒し

摩擦が弱い場合(Γ~0)では,別の機構の光誘起ド ミノ倒し過程が存在する。光励起された直後に生じる格 子緩和の際に放出される「格子緩和エネルギー」は,摩 擦が強い場合は直ちに外界(熱浴)に放出される。しか し摩擦が弱くなると,系と熱浴との結合が弱まり,外界 にエネルギーが放出されにくくなる。そのために格子緩 和エネルギーを系内部で再利用する過程が生じる。その 結果、ドミノ倒しの加速度運動やドミノのシンクロ(同 調)運動が生じることが数値的に明らかにされている¹⁰。 また,摩擦が強い場合に出現していた3つの相I,II,III,III とは別に,第4の相 IV^aが存在する^{17,18})。そこでは,光 励起されたサイトの電子が励起状態にいるままで(自然 放出を起こさずに),近隣分子のドミノ倒しが進行する もので,摩擦がある臨界値よりも小さい場合のみに出現 する過程である。このように,散逸の度合いは,光誘起 ドミノ倒しに大きな影響を与える。

5.2 非断熱遷移を含むドミノ倒し

断熱レジームと透熱レジームの中間的状況(*t~S^{-1/2}*) では,格子運動の量子性が重要となり非断熱遷移が生じ るため,準古典近似は破綻し,ドミノ倒し過程は本質的 に確率過程になる。この過程を正確に取り扱うには,電 子系も格子系も量子力学に従う時間発展を追跡する必要 があるが,数値的にも非常に大変である。そこで,準位 交差点近傍でのランダウ ツェナー(Landau-Zener)遷 移を考慮した「非断熱ドミノ倒し」の有効モデルが提案 され,数値的¹⁹および解析的²⁰な研究がなされている。 光誘起ドミノ過程は結晶全体まで進行せず,途中で止ま る場合がある(有限サイズの相変化ドメインが現れる)。

5.3 複数のサイトが励起された場合

2つの別のサイトが,同時にあるいは時間差を付けて 光励起された場合のドミノ倒し過程も,数値的に研究さ れている²¹)。単一サイトのみの光励起ではドミノ倒しが 生じないような領域(たとえばI^a領域)であっても, 光励起される2つのサイト間距離と励起の時間差とがあ る範囲内であれば,ドミノ倒しが進行することがある。 複数サイト励起の光誘起ドミノ倒し過程は,I^aやI^a領域 の物質に対して,臨界核サイズや照射光強度の閾値の存 在と関係がつけられる。III^aや III^a領域の物質に対して ドミノ倒しを誘発するためには,光励起サイトの数密度 がある臨界値を超えなければならないので,光励起状態 が消滅する寿命の時間スケールよりも短い時間で臨界数 密度に達するくらい大きな光強度が必要となる。

6.ま と め

光誘起ドミノ倒し過程を記述するために,最も単純化 された1次元局在電子格子モデルを作り,そのダイナ ミクスの解析を行った。断熱極限と透熱極限の双方で, 短距離力で適当な強度を持つ相互作用の場合に,光誘起 ドミノ倒しによる大域的な構造相転移を引き起こすこと がわかった。前者は「決定論的ドミノ倒し」(ドミノ倒 し速度が一定で自然放出を伴わない),後者は「確率的 ドミノ倒し」(ドミノ倒し速度が不定で自然放出を伴う) で,これら両極限でのドミノ倒しの性質の差異を明らか にした。光誘起相転移過程に平均場近似を適用した理論 解析^{15,22}もあるが,ドミノ倒し過程は,平均場描像では 理解できない現象である。最近では,電子の非局在性を 取り入れた理論構築⁷⁷やモンテカルロ法による大規模な 数値計算^{23,24)}も行われている。光誘起ドミノ倒し理論は, 古典核生成理論の大幅な拡張である。すなわち古典核生 成理論³が,電子の基底状態部分空間内での記述に限定 されていたのに対し,光誘起ドミノ倒しは電子の励起状 態までを取り入れた光誘起核生成過程に対応する。よっ て,エネルギー緩和や散逸機構を正しく考慮することが 肝要である。

謝辞 辞

本研究を遂行するにあたり,科学技術振興事業団さき がけ研究21「状態と変革」研究領域および科学研究費 補助金特定領域研究(B)「光誘起相転移とその動力学」 から援助を受けました。ここに感謝します。

文 献

- T. Ogawa and Y. Kanemitsu (eds): "Optical Properties of Low-Dimensional Materials" (World Scientific, Singapore, 1995); "Optical Properties of Low-Dimensional Materials, Volume 2" (World Scientific, Singapore, 1998).
- K. Nasu (ed.): "Relaxations of Excited States and Photo-Induced Structural Phase Transitions" (Springer, Berlin, 1997).
- J.D. Gunton and M. Droz: "Introduction to the Theory of Metastable and Unstable States" (Springer-Verlag, Berlin, 1983).
- K. Koshino and T. Ogawa: J. Phys. Soc. Jpn. 68, 2164 (1999).
- 5) K. Koshino and T. Ogawa: J. Lumin. 87 89, 642 (2000).
- 6) Y. Ogawa, S. Koshihara, K. Koshino, T. Ogawa, C.

Urano and H. Takagi: Phys. Rev. Lett. 84, 3181 (2000).

- K. Koshino and T. Ogawa: Phys. Rev. B 61, 12101 (2000).
- K. Koshino and T. Ogawa: Int. J. Mod. Phys. B 15, 3837 (2001).
- 9) 越野和樹 小川哲生:日本物理学会誌 55,861 (2000).
- E. Hanamura and N. Nagaosa: J. Phys. Soc. Jpn. 56, 2080 (1987).
- K. Koshino and T. Ogawa: J. Phys. Soc. Jpn. 67, 2174 (1998).
- 12) K. Koshino and T. Ogawa: Phys. Rev. B 58, 14804 (1998).
- 13) K. Koshino and T. Ogawa: J. Phys. Chem. Solids 60, 1915 (1999).
- 14) T. Ogawa: Mol. Cryst. Liq. Cryst. 361, 199 (2001).
- 15) T. Ogawa: Phase Transitions 74, 93 (2001).
- 16) V.V. Mykhaylovskyy, V.I. Sugakov, K. Koshino and T. Ogawa: Solid State Commun. **113**, 321 (1999).
- V.V. Mykhaylovskyy, T. Ogawa and V.I. Sugakov: Ukrainian J. Physics 46, 1097 (2001).
- 18) V.V. Mykhaylovskyy, T. Ogawa and V.I. Sugakov: Phys. Stat. Sol. (b) 231, 222 (2002).
- K. Koshino and T. Ogawa: J. Korean Phys. Soc. 34, S21 (1999).
- 20) T. Ogawa: Phase Transitions (in press).
- V.V. Mykhaylovskyy, T. Ogawa and V.I. Sugakov: (in press).
- 22) N. Nagaosa and T. Ogawa: Phys. Rev. B 39, 4472 (1989).
- 23) O. Sakai, T. Ogawa and K. Koshino: J. Phys. Soc. Jpn. 71, 978 (2002).
- 24) O. Sakai, M. Ishii, T. Ogawa and K. Koshino: J. Phys. Soc. Jpn. 71, 2052 (2002).