

令和 4 年 6 月 9 日現在

機関番号：82118

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2017～2021

課題番号：17K05509

研究課題名（和文）ヒルベルト空間特異性と量子摩擦によって記述する光誘起相転移

研究課題名（英文）Photoinduced phase transition described by Hilbert space anomaly and quantum friction

研究代表者

岩野 薫（Iwano, Kaoru）

大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構・物質構造科学研究所・研究機関講師

研究者番号：10211765

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,800,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では次の3つの成果を得た。2次元電荷秩序系において、ストライプ状態への光励起によるドメイン状態の発生の発見、電子フォノン散乱が存在する場合において、その影響がドメイン成長、すなわち、ドメインサイズを変数とした波束の進行運動に与える負の影響、すなわち減速メカニズムを明らかにした、および、X線非弾性散乱に対応する運動量依存スペクトル、およびX線吸収スペクトルの計算・理解を行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

光誘起相転移は近年非常にホットなテーマであるが、まだまだ基礎概念的にも不十分なところが多く、本研究ではそれを上記3つの観点で明瞭化することが出来たと考えている。本研究で扱った現象は全て電子的光誘起相転移、すなわち電子系の自由度が主にに關係するという特徴がありフェムト秒オーダーの極めて超高速な現象であるので、今後の超高速デバイス等の開発における基礎理論としても有用であると期待される。

研究成果の概要（英文）：In this research, we have obtained the following three outcomes. First, we found a new type of photoinduced phase transition (PIPT), which is characterized by the charge-order (CO) transformations from the Y-type CO to other CO's. Second, we have clarified the deceleration mechanism of a domain growth, which is newly found to depend strongly on its gravity-center-momentum, K . Lastly, we treated the cases assuming X-ray pulses. We calculated the X-ray absorptions (XAS) and inelastic scatterings and presented expected spectral shapes in the PIPT systems.

研究分野：光物性

キーワード：光誘起相転移 強相関電子系

1. 研究開始当初の背景

光によって物質の相を巨視的に変化させるいわゆる光誘起相転移の研究が盛んになりつつあったが、特に電子的な自由度のみが超高速に変化する電子的光誘起相転移に注目が集まっていた。筆者は先駆的この問題に2010年以前から取り組み、既に1次元系において幾つかの研究を発表していた。一方、2次元系はよく知られた高温超伝導に関係する銅酸化物系や、分子性結晶などで典型的に現れ、現実系との比較においても極めて重要であるにもかかわらず、計算の難しさもあり筆者自身も含めてまだ十分な研究が行われていなかった。また、散逸を考慮した理論研究も少なく、特に散逸がドメイン成長とどう関係するかという基本的な理解も十分でなかった。また、放射光に代表される高エネルギー励起に関して、X線非弾性散乱による分散関係の検知、X線吸収で見たドメイン成長などの問題もほとんど議論されていなかった。

2. 研究の目的

本研究では上記の背景に基づき、次の3つを目的とした。①2次元電荷秩序系において、ストライプ状態への光励起によるドメイン状態の発生、②電子フォノン散乱が存在する場合において、その影響がドメイン成長、すなわち、ドメインサイズを変数とした波束の進行運動に与える負の影響、すなわち減速メカニズムを明らかにする、および、③X線非弾性散乱に対応する運動量依存スペクトル、および、X線吸収スペクトルの計算・理解である。

3. 研究の方法

①、③の非弾性散乱については2次元スピンレスフェルミオンモデルを6×6の格子で厳密対角化によって扱った。③のX線吸収についてはこれまでの研究との比較という観点から1次元拡張ハバードモデルをDMRG法で扱った。最後に②についてはドメイン自由度だけ取り出した有効モデル、ドメインモデルを用いて解析的な議論や、フォノンを取り入れて数値計算を行った。

4. 研究成果

①まず、用いる2次元スピンレスフェルミオンモデルを示す。ここで、 t_0 は電子のtransfer energy、 $V(1-1')$ は異なるサイト間クーロン斥力である。

$$H = -t_0 \sum_{(l,l')=n.n.} (C_l^\dagger C_{l'} + h.c.) + \sum_{(l,l')} V(l-l') n_l n_{l'}$$

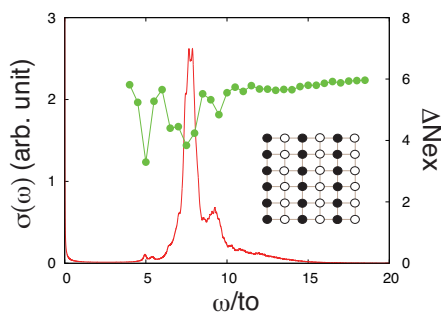


図1: Yストライプを基底状態とした場合の光学伝導度(赤線)と電子励起数の増分 ΔN_{ex} (緑線)。

このモデルを用いて、光学伝導度の計算を厳密対角化を用いて6×6の格子で行った。図1にYストライプ秩序(挿入図参照)の光学伝導度 $\sigma(\omega)$ (赤線)とその各エネルギー状態における電子励起数の増分、 $\Delta N_{ex}(\omega)$ (緑線)を示す。ここで具体的な $V(1-1')$ は、最近接 $V=5t_0$ 、次近接 $V'=7t_0$ 、その他の斥力の指標 $V_{NNN}=0.03t_0$ である。以前の研究ではチェッカーボード型の電荷秩序を想定し、同様の計算を行ったが、その場合と同様に電子励起数が大きく1を超え、集団運動(ドメイン状態)が実現していることを確認する事が出来た。詳しく見ると、光学伝導度の最大ピークではやや $\Delta N_{ex}(\omega)$ が下がり、その高エネルギー側でより大きくなっている。この特徴は前述のチェッカーボード型の場合も同じであった。

Y-stripe: $\omega=7.5$ (=Max. Peak) $\Delta C(q_x, q_y)$

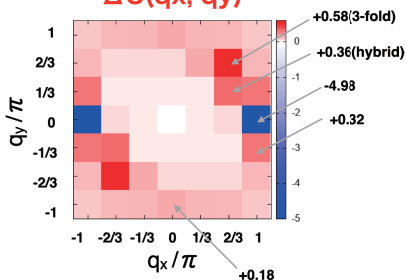


図2: 図1の最大ピーク付近の状態の電荷相関関数。

次に最大ピークに対応する励起状態の電荷相関関数を求め、それを図2に示した。励起の始状態は既に述べたようにYストライプ状態なので、 $(\pi, 0)$ のみにウェイトがあるのに対し、この励起状態においては $(\pi, 0)$ のウェイトは有意に下がり、一方、幾つかの状態において増加が見られる。その中で最大のものは3-fold状態であり、この増加はチェッカーボード型からの場合も見られた。一方、チェッカーボード型への遷移はゼロではないが、それほど大きくなかった。なお、hybridと記したのは、ストライプ型とダイアゴナル型(対角線方向の電荷整列状態)の混合状態であり、これも比較的大きなウェイトで出現している。

②ドメイン壁波束の減速メカニズム

まず、いわゆるドメインモデルに熱浴を加えた場合について一般的に定式化する。まず、時間発展する系(システム+熱浴)の波動関数を $|\Psi(t)\rangle$ とし、サイズ p 、運動量 K のドメイン状態および熱浴の1状態成分への射影の和は以下のように表される。

$$\begin{aligned} \sum_{K} |\langle\langle l|pK|\Psi(t)\rangle| &= \sum_K \langle pK | \sum_l \langle\langle l|\Psi(t)\rangle \langle\Psi(t)|l\rangle\rangle |pK\rangle \\ &= \sum_K \langle pK | \rho(t) | pK \rangle = \sum_K \rho_{pK,pK} \equiv P_K(p) \\ &= \sum_{K, kk'} \langle K | p | k \rangle \langle k | \rho | k' \rangle \langle k' | p \rangle | K \rangle \\ &= \sum_K \left(\sum_{kk'} \left(\frac{1}{\sqrt{N+1}} \right)^2 \sin(kp) \sin(k'p) \rho_{kk, kk'} \right) \end{aligned}$$

ここで、density matrix を $\rho_{pK,pK}$ として導入した。最初の定義からこれは対角成分だけを有する。一方、同じdensity matrix をドメインの内部運動量 k で行列表示し、それを $\rho_{kk'}$ とする。こちらの量では、 k, k' について非対角成分も現れる。この異なる $\rho_{kk'}$ の間に一定の位相が保たれている事が波束が進行すると言う事であり、しかもそれは最終的には、 $\rho_{kk, kk'}$ と言うように重心運動量 K 依存している。以上の解析から、I. $\rho_{kk, kk'}$ の異なる (k, k') に対する位相のコヒーレンスが乱れる事が減速を引き起こし、さらにその程度は K に依存するという結論が得られた。

なお、どの程度 K に依存するかを具体的なドメイン・フォノン結合モデルで計算し図3に示した。 $K=0$ ではコヒーレント部分($t \sim 30$)が大きいが、 $K \sim \pi$ ではほとんど消失する。全体の波束はこれらの平均であるが、このように K が増えるにつれて単調に相対インコヒーレンスが増えるという傾向は、 K に依存して減少するバンド幅に起因するものとして自然に理解される。

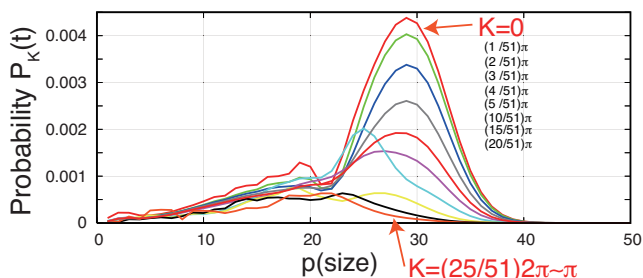


図 3: K 分解された波束の確率密度。時刻 $t=100$ である。

③

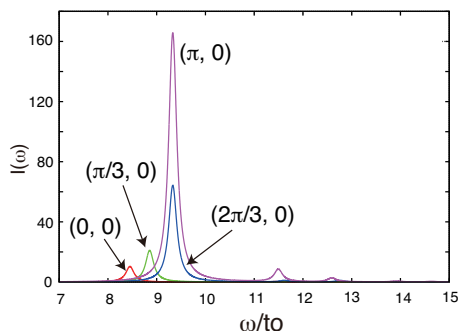


図 4: 非弾性散乱スペクトルの計算例。 $V=3t_0$ の場合。

(1) 2次元非弾性散乱スペクトル

図4に①の計算で用いたモデルに基づき、チェッカーボード型の基底状態からの非弾性散乱スペクトルの計算結果を示す。なお、一番低エネルギーの $(K_x, K_y)=(0, 0)$ が光学伝導度に対応する。図から分かる通り、比較的大きな分散が存在し、これは励起子状態がそれなりに動けることを意味する。なお、少なくともこの範囲の運動量では運動量が増えるにつれて励起子のエネルギーは上がる一方で、これは直接ギャップの常識と一致している。一方向(この場合は x 方向)のバンド幅はこの結果から t 程度と見積もられ、これは裸の粒子の場合の $4t$ よりはずっと小さい。このような特徴があるので、今後実際の物質で分散の測定が行われる事を期待したい。

(2) 1次元系のX線吸収(XAS)スペクトル

1次元光誘起相転移系のモデルとして、サイト交代ポテンシャルを有する拡張ハバードモデルを用いた。このモデルに対しては過去に角度分解光電子スペクトル(ARPES)を計算した経験があるので、図5にX線吸収スペクトル(XAS)とARPESの結果も併せて示した。ここで、XASにおいては内殻正孔の引力が発生するが、今回はスクリーニングが十分効いている状況を想定してそのような引力は無視した。まず、明瞭に確認出来るのは、電子励起数 N_{ex} がやはり10程度と大きいことであり、これはARPESの場合と遜色ない。一方、スペクトル形状はブロードな連続帯になるが、これはARPESのスペクトルを左右反転したものを波数 k でコヒーレントに重ね合わせた

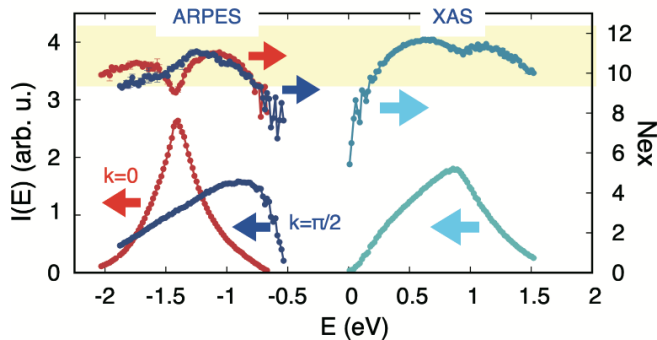


図5: 同じモデルで計算した ARPES と XAS の計算例。拡張ハバードモデルの $U=2.4076$ eV, $V=1.070$ eV, $t_0=0.17$ eV である。奇数サイトと偶数サイトのサイトエネルギーの差 = 0.28 eV であり、これはちょうど相境界に位置する。

$I_{XAS}(\omega) = I_{XAS,h}(U+4V+\Delta-\omega)$ として求めている。つまり、元々求まっているのは、 $I_{XAS,h}(\omega)$ であり、それを再度 ARPES スペクトルと併せて示したのが図6である。

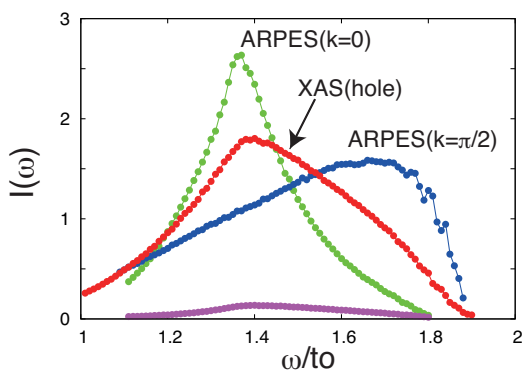


図6: 図5 と基本的に同じだが、XAS のスペクトルをホール描像のものに変換、すなわち、左側に折り返した。(厳密には本文参照のこと)

した場所 (原子、分子、単位胞など) から起きるのか、がしばしば問題になる。通常の理論では理想的な前者が扱われるが、実際の現実系では非一様性、不均一性により後者の状況に近いと考えられる。想定されるこのような2つの状況のダイナミクスにどのような違いがあるかが興味深い。今回の2つの計算例 (サイト間の干渉性の有る無し、あるいは、サイト間の entanglement の有る無し) はこのような2つの状況に最も単純な形で対応している。一定の答えを出し得る立場にある。そして今回は、赤線と青線のような違いが現れると結論出来た。なお、時間発展計算はまだ行っていないが、これらのスペクトルをフーリエ変換すれば一部の時間依存の物理量 (サイズ1のドメインの存在確率) は得られるので、それも近い将来求めて比較をしてみたいと考えている。

ものと対応している。なお、ここで、「コヒーレント」という意味は、強度の計算において遷移振幅に対して k 積分 (和) を行い、その上で2乗したものに对应する。(つまり、各 k ごとのスペクトルの和ではない。) なお、ここでさらに ARPES のスペクトルとの対応関係を考えてみると、まず、両者は電子注入と、ホール (正孔) 注入という形式的な違いがあるが、モデルに電荷共役性 (ただし、偶数サイト番号と奇数サイト番号を入れ替える操作も要請) があるので、それを考慮すると、図5のXASのスペクトル ($I_{XAS}(\omega)$) は仮想的にホールに対応するものに変換するならば、左に折り返されるべきである。(それを $I_{XAS,h}(\omega)$ とする) 実は、実際の計算では全てホールとして計算しており、後者から前者を、

まず注目すべきは形状の違いであるが、これはXASが k 積分を行っていることを考えると、特定の k のARPESスペクトルとは異なるのはある意味当然である。一方、物理的に考えてみると、ARPESではある波数を持った系全体に広がった平面波のホールを仮定している。特に、 $k=0$ ではその状態は一樣であり、これは全てのサイトを出発点としてドメイン形成が起こり、それらがコヒーレントに重ね合わされている状態と見なすことが出来る。一方、図6のXAS (青線) においては内殻正孔を仮定している。そのドメイン成長の始状態はあるサイトに局在したホールであり、その意味でサイト間の干渉は存在しない。別の言い方をすると、前者の場合にはサイト間の状態が entangle しているのに対し、後者では entangle していない。

一般に光誘起相転移を考える場合、ドメイン成長が系全体で一樣に起きるのか、それともどこかの局在した場所から起きるのか、がしばしば問題になる。通常の理論では理想的な前者が扱われるが、実際の現実系では非一様性、不均一性により後者の状況に近いと考えられる。想定されるこのような2つの状況のダイナミクスにどのような違いがあるかが興味深い。今回の2つの計算例 (サイト間の干渉性の有る無し、あるいは、サイト間の entanglement の有る無し) はこのような2つの状況に最も単純な形で対応している。一定の答えを出し得る立場にある。そして今回は、赤線と青線のような違いが現れると結論出来た。なお、時間発展計算はまだ行っていないが、これらのスペクトルをフーリエ変換すれば一部の時間依存の物理量 (サイズ1のドメインの存在確率) は得られるので、それも近い将来求めて比較をしてみたいと考えている。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Iwano K., Yamaguchi T., Okamoto H.	4. 巻 102
2. 論文標題 Ultrabosonic behavior in photoexcited one-dimensional Mott insulators in the region of weak intersite Coulomb interaction	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 245114-(1-10)
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.102.245114	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Yamaguchi T., Asada K., Yamakawa H., Miyamoto T., Iwano K., Nakamura T., Kida N., Okamoto H.	4. 巻 99
2. 論文標題 Photoexcitation of a one-dimensional polarization-inverted domain from the charge-ordered ferroelectric ground state of (TMTTF) ₂ PF ₆	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 245104:1-10
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.99.245104	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 K. Iwano	4. 巻 9
2. 論文標題 Bloch Oscillations Due to Quantum Domain Breathing in One-Dimensional Electronic Photoinduced Phase Transitions	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Applied Sciences	6. 最初と最後の頁 246:1-12
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.3390/app9122461	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 Yamaguchi T., Iwano K.	4. 巻 196
2. 論文標題 The Optical Conductivity for a Spin-Peierls Ground State of (TMTTF) ₂ PF ₆ with Tetramer Formation	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Low Temperature Physics	6. 最初と最後の頁 293-300
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1007/s10909-019-02162-1	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 岩野薫、山口辰威
2. 発表標題 1次元モット絶縁体において予想されるブリーチングおよびアンチブリーチング効果
3. 学会等名 日本物理学会2020年春季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 山口辰威、岩野薫
2. 発表標題 TMTTF塩における電荷秩序基底状態からの光励起の理論 2
3. 学会等名 日本物理学会 2018年秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 山口辰威、岩野薫
2. 発表標題 四量体化したTMTTF塩のスピンパイエルズ相 における光励起状態の理論解析
3. 学会等名 日本物理学会 第74回年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 岩野薫
2. 発表標題 2次元電荷秩序系におけるハイブリッド秩序
3. 学会等名 日本物理学会 第74回年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 岩野薫
2. 発表標題 Deceleration of quantum domain growth induced by electronic decoherence
3. 学会等名 東北大学理学部物性コロキウム（招待講演）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 K. Iwano
2. 発表標題 Deceleration of quantum domain growth
3. 学会等名 6th International Conference on Photoinduced Phase Transitions（国際学会）
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 （ローマ字氏名） （研究者番号）	所属研究機関・部局・職 （機関番号）	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関