

機関番号：82118
 研究種目：基盤研究（C）
 研究期間：2007～2009
 課題番号：19540350
 研究課題名（和文） 光誘起相転移系におけるスペクトル異常と超高速現象
 研究課題名（英文） Spectral Anomaly and Ultrafast Phenomena in Photoinduced Phase Transition Systems
 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・助教
 研究者番号：10211765

研究成果の概要（和文）：

超高速で起きると考えられる純電子的光誘起相転移について様々な角度から考察を行った。得られた成果は次の3つに整理される。（1）放射光（X線）による検出の可能性とスペクトルの予言。（2）2次元系におけるドメイン励起。（3）実時間ドメイン成長動力学的特徴。

研究成果の概要（英文）：We have investigated pure electronic photoinduced phase transitions as ultrafast phenomena. The obtained principal results are as follows. (1) Possibilities of detection of domain formations by synchrotron radiation (X-ray). (2) Domain formations in the two dimension. (3) Features of real-time domain-growth dynamics.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007	2,900,000	870,000	3,770,000
2008	400,000	120,000	520,000
2009	400,000	120,000	520,000
総計	3,700,000	1,110,000	4,810,000

研究分野：光物性

科研費の分科・細目：物理学・物性II

キーワード：光誘起相転移、超高速現象、多体問題

1. 研究開始当初の背景

超高速な光誘起相転移に最近関心が集まってきている。これはフェムト秒領域の超高速時間分解分光の技術的・科学的発展の賜以外の何者でもないが、一方で理論的な検討が遅れていた。

2. 研究の目的

超高速に生成されると考えられる純粋に、あるいは、ほぼ電子的ドメインの量子力学的性質を理論的に明らかにする。

3. 研究の方法

励起状態に潜んでいると考えられるドメイン状態をスペクトロスコーピーを通して検出するために動的密度行列繰り込み群法（DDMRG

法）、および、厳密対角化の手法を用いる。また、実時間発展についてはフォノン数を制限した範囲内で厳密に計算し、フォノン数を増加させて計算の収束性を確かめる。

4. 研究成果

(1) 放射光によるドメイン検出

用いたモデルは以下のような交代サイトポテンシャル付き拡張パイエルスハバードモデルである。

$$\begin{aligned}
H = & -t_0 \sum_{l\sigma} (C_{l\sigma}^\dagger C_{l+1\sigma} + H.c.) \\
& + U \sum_l n_{l\uparrow} n_{l\downarrow} + V \sum_l n_l n_{l+1} \\
& + \Delta_{eff} \sum_{l=even} n_l
\end{aligned}$$

このようなモデルを用いてX線(非共鳴)非弾性散乱を計算したものが下図(Fig. 1)であり、散乱運動量(k)に依存して非常に大きなエネルギー変化、すなわち分散を見出す。

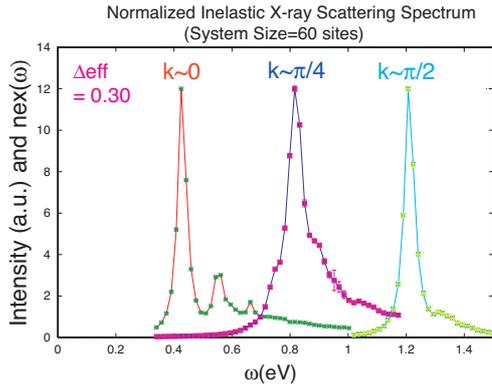


Fig. 1: 非弾性散乱計算結果。

このことは以下に示すようなドメイン自由度(ドメインの重心及び空間広がり)のみを取り出したドメインモデル I によって再現出来、例えば、上図に対応するパラメータ領域での分散はFig. 2に示されるようにFig. 1の計算結果と定性的には整合する。

$$\begin{aligned}
H_D = & -\sqrt{2}t_0 \sum_{l_D, p} \{ (|l_D, p+1\rangle + |l_D-1, p+1\rangle) \langle l_D, p| + H.c. \} \\
& + \sum_{l_D, p} E(p) |l_D, p\rangle \langle l_D, p|, \\
\sigma(\omega) = & \frac{(et_0)^2 \gamma}{\pi \omega} \sum_j \sum_{l_D} | \langle j | l_D, 1 \rangle |^2 / ((\omega - \epsilon_j)^2 + \gamma^2).
\end{aligned}$$

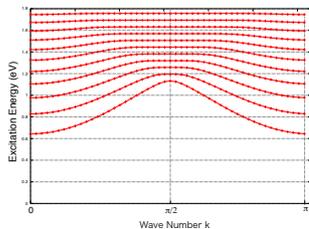


Fig. 2: 分散関係。

次に角度分解光電子分光の場合を示す。Fig. 3 に相転移点直上における計算結果を図示するが、元々の拡張ハバードモデルによる場合の結果がDDMRGと示された曲線(黒実線)であ

り、角度分解=運動量分解であるにもかかわらず特異な形状となる。この結果は Fig. 4 に図で定義されるようなドメイン内部のスピ配置も取り入れた新たな有効モデル(ドメインモデル I II) によって赤実線のように定性的に説明することに成功した。

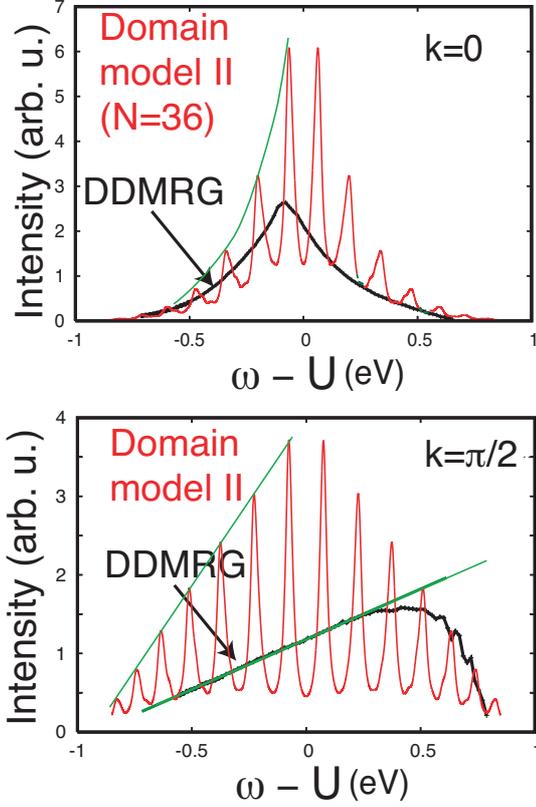


Fig. 3: 角度分解光電子分光。

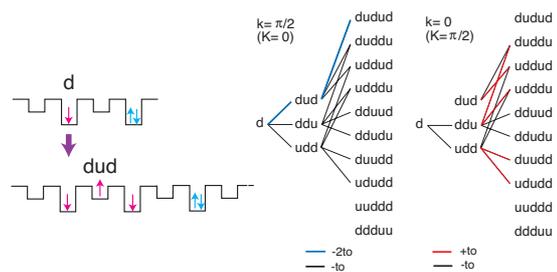


Fig. 4: ドメインモデル II の定義図。

(2) 2次元系におけるドメイン励起

2次元系におけるドメイン励起の可能性を探るために以下のような2次元スピンレスモデルを用いてスペクトル計算を行った。

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

ここで、 t_0 、 V はそれぞれ電子のトランスファー積分及び最近接間クーロン斥力であり、また、システムサイズは 8×4 である。Fig. 5に $V=2$ 、 $t_0=1$ の場合の計算結果を示す。赤、紫、緑実線がそれぞれ光学伝導度 $\sigma(\omega)$ 、電子励起数 $N_{ex}(\omega)$ 、最近接間相関の増加分 $\Delta(\omega)$ に対応する。図から分かるように主ピークの高エネルギー側に紫斜線でハッチングされたような多電子励起の存在を確認する事が出来た。

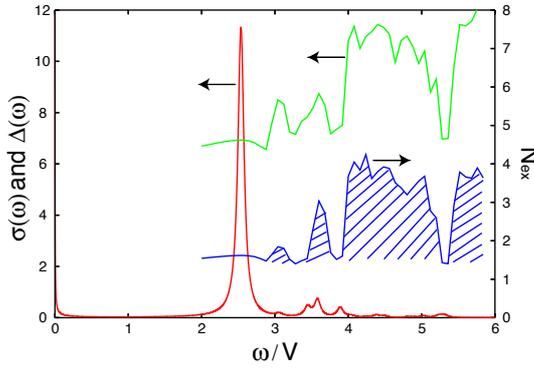
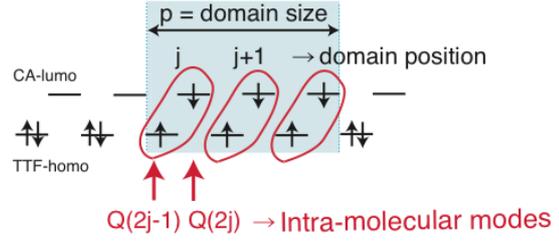


Fig. 5: 2次元系 (8×4) におけるスペクトル。

(3) 実時間現象

以上は文字通り電子自由度のみの場合であった。上記で電子自由度に限ったのは超高速プロセスに興味があったからであるが、一方で、高い振動数のフォノンが関与しても超高速性は維持され、そのようなフォノンの動力学への関与の仕方も重要な論点である。そこで、Fig. 6 に示されるように高振動数フォノン（分子性結晶の場合であるなら分子内振動モード）をドメインモデル I に導入し、その影響を時間発展計算によって解析した。

まず、フォノンの効果を大まかに考えると、フォノン散乱無しでは、Fig. 7 に示されるように、相転移点直上の場合はドメインバンドが形成されている。以下、可視光励起を考えると、フォノン散乱が無い場合は、ドメイン重心運動量 K は垂直赤線で示されるように $K=0$ の範囲に留まる。（可視航行士の運動量を零と近似した。）さらに、その分布も基本的にパルス励起直後の分布が維持されるはずであるので、実空間ではコヒーレントなドメイン成長、あるいは、ドメイン壁運動となる。しかしながら、フォノン散乱が存在すると、紫矢印で示されるように垂直・水平両方向への散乱



$$\begin{aligned} H_{e-ph} &= \alpha \sum_l (n_l - \bar{n}(l)) Q(l), \text{ where } \bar{n}(l) = 2, 0, 2, 0, \dots \\ q(j) &= Q(2j) - Q(2j-1) \\ H_{D-ph} &= \alpha \sum_{jp} (q(j) + q(j+1) + \dots + q(j+p-1)) C^\dagger(jp) C(jp) \\ H_{ph} &= \sum_l ((1/2\mu)\pi(j)^2 + (1/2)(K/2)q(j)^2) \end{aligned}$$

Fig. 6: 高振動数フォノンの導入の説明図。

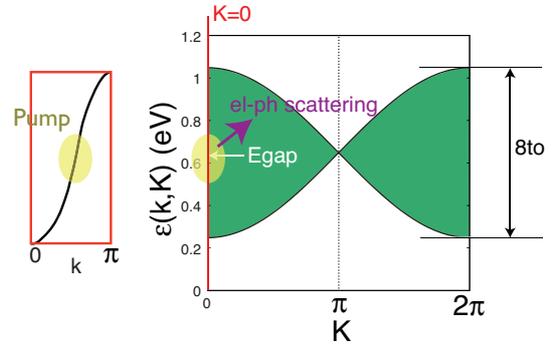


Fig. 7: ドメインバンドへの光励起とフォノン散乱。

が起きると考えられ、その効果を計算によって解析する。

フォノンがある場合の状態波動関数は以下のように書ける。

$$|\Phi_{K_T}\rangle = \frac{1}{\sqrt{(N+1)}} \sum_{j=1}^{N+1} \sum_{p=1}^N e^{iK_T j} |jp\rangle = \prod_l \{|n_l \gg_{j+l}\rangle\} \phi^{(K_T)}(p, \{n_l\}),$$

where $|n_l \gg_{j+l}\rangle$ is the phonon number state at $(j+l)$ -th unit cell.

ここで、 K_T はフォノンも含めた全運動量であり、可視光励起である本計算では零に設定してある。なお、ここで、フォノンの状態の指定は、Fig. 8 のように行う。すなわち、ドメインの位置に対して相対的に指定し、ドメイン内部とドメイン外部に分けて行う。ドメイン外部はドメイン両端にsleeve(袖)として置く。系のサイズが非常に大きい場合はこのsleeveを適当に限って精度を実質的に落とさない範囲内で計算を簡単化させることが出来るが、今回は50サイトの系を計算しており、本計算ではsleeveの制限は加えていない。また、励起フォノン数は5を上限にしてある。これで十分かどうかは、励起数を4に下げて

計算結果の比較をあまり変わらないことをチェックする必要があるが、今回用いたパラメータおよび観察時間の範囲内ではほぼ問題ないことが分かっている。

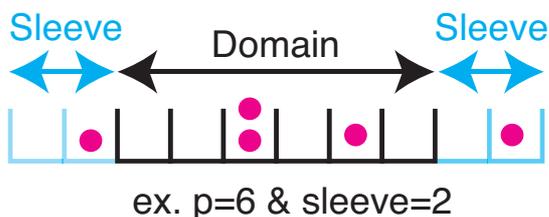


Fig. 8: フォノン状態の定義図。

次図 (Fig. 9) に電子格子相互作用 $S=0.04$ eV, $t_0=0.1$ eV の場合の結果を示す。特徴的なのは、 $t=140$ (~ 92 fs) における遅延成分である。ここで、赤実線がフォノン散乱のある場合、青実線が無しの場合である。散乱のある場合、domain size = 40 辺りの主ピークにも青線と比べると遅延があるが、この部分はまだ一定の群速度で動いているように見えるのに対し、ピンク色の部分は $t=140$ の時間領域ではほとんど時間変化をしておらず、止まってしまったように見える。

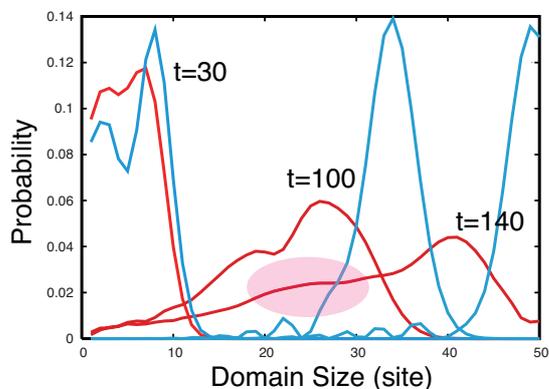


Fig. 9: ドメイン成長の時間発展。パルス励起の時間幅は $\Delta t = 30$ (~ 20 fs)。

この事を理解するために次図 (Fig. 10) のようなドメインバンドへのマッピングを行った。ここでは時間 $t=140$ の場合を示しており、まずはバンド内への実質的な遷移が認められ、特に群速度がゼロもしくは非常に小さい領域 (ピンク色の部分) への遷移が上記のようなドメイン成長の遅延成分に対応していると解釈される。

以上の結果は、(1)は後述の論文1で発表済みで、(2)および(3)は現在論文を準備中である。

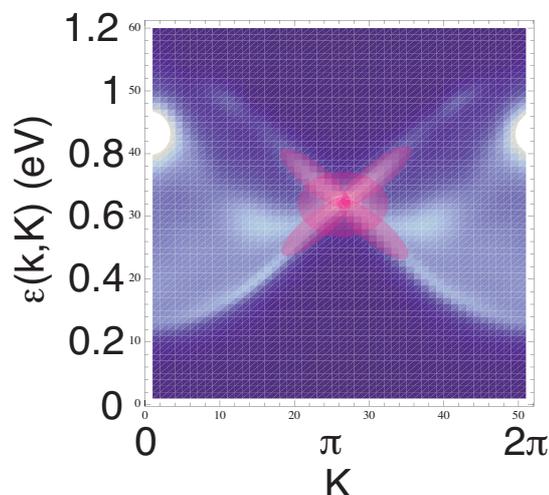


Fig. 10: ドメインバンドへのマッピング図。 $t=140$ に対応する。縦軸はドメインの運動エネルギー。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計1件)

1. K. Iwano, Phys. Rev. Lett. 102, 106405 (2009), "Detection of Domain Dynamics by High Energy Photons: Proposals in One-dimensional Photoinduced Phase Transition Systems"

[学会発表] (計6件)

1. K. Iwano, 2008 Gordon Research Conference on Ultrafast Phenomena in Cooperative Systems, 20082月4日, Il Ciocco (イタリア), "Ultrafast Photoinduced Phase Transitions Without Lattice Motion"

2. K. Iwano, 3rd International Conference on Photo-induced Phase Transitions and Cooperative Phenomena, 200811月11日, 大阪, "Ultra-fast dynamics in low-dimensional electronic systems: Quantized size, dispersion, and spin dissipation"

3. K. Iwano, 3rd International Symposium on Molecular Materials: Electronics, Photonics and Spintronics, 200910月29日, レンヌ (フランス), "Photoinduced Phase Transitions in Organic Materials: Two

complementary Theoretical
Approaches”

4. K. Iwano, VYVX2010, 2010年7月13日、バンクーバー (カナダ)、

“Domain excitation as a novel type of electron excitation: Manifestations in ARPES and IXS”

5. 村上洋一・岩野薫、KEK大型シミュレーション研究シンポジウム、2011年1月31日、つくば、
「物質構造研究におけるスパコン利用—これまでの成果と展望—」,

6. 岩野薫、「固体光誘起状態の非平衡ダイナミクス理論とその今後の展望」研究会、2011年2月16日、つくば、
「光誘起相転移：第一原理計算とモデル計算」

6. 研究組織

(1) 研究代表者

岩野 薫 (KAORU IWANO)

高エネルギー加速器研究機構：物質構造科学研究所・助教

研究者番号：10211765

(2) 研究分担者

無し。

研究者番号：

(3) 連携研究者

無し。