

研究種目：基盤研究 (C)

研究期間：2007～2010

課題番号：19540381

研究課題名 (和文) 分子性低次元導体の光誘起相転移動力学の理論

研究課題名 (英文) Theory of Photoinduced Phase Transition Dynamics
in Low-Dimensional Molecular Conductors

研究代表者

米満 賢治 (YONEMITSU KENJI)

分子科学研究所・理論・計算分子科学研究領域・准教授

研究者番号：60270823

研究代表者の専門分野：物性理論

科研費の分科・細目：物理学・物性II

キーワード：有機導体、電荷秩序、光誘起相転移、絶縁体金属転移、コヒーレント振動

1. 研究計画の概要

(1) 光照射を通して、物質を意図的に非平衡環境下におき、電子相を変換する現象の理解を深める。特に、相互作用が競合して多様な電子相が出現しやすい、低次元電気伝導性を持つ分子性導体に焦点を当て、電子相関を正しく取り入れるために、遍歴電子模型に基づいた計算を行う。

(2) 光照射に直接駆動される速い電子の動きから、相互作用を通して生じる分子の位置や形の遅い変化に至るまで、異なる時間・エネルギースケールを対象とするために、それぞれ即したアプローチをとる。短時間・短距離で重要な電子相関から、長時間で顕著になる緩和過程や長距離で現れるドメイン形成・破壊過程を一貫して説明する。

(3) 特に、(EDO-TTF)₂PF₆の光誘起相と振動コヒーレンスの起源、 θ 型と α 型の(BEDT-TTF)₂Xの電荷秩序が異なる光誘起ダイナミクスを示す起源などを明らかにするとともに、新たに光誘起ダイナミクスに対する量子フォノン効果を解析する。

2. 研究の進捗状況

(1) 擬1次元有機塩(EDO-TTF)₂PF₆において、(0110)型電荷秩序をもつ絶縁相に光を照射すると伝導度の高い電子相になるが、金属相ではなく(1010)型の新たな電荷秩序とキャリアが共存する相であることを、実験研究と共同して明らかにした。伝導度がコヒーレントに振動することが知られていたが、観測エネルギー次第でインコヒーレントになること、それは見ている電子運動が違うことによると

いうことを明らかにした。

(2) スピン・パイエルス絶縁体のK-TCNQにおける、光誘起のギャップ内電子状態の起源が謎だったが、密度行列繰り込み群で解析の後、格子歪みによりスピンと電荷の結合した励起状態であることを示した。量子常誘電-強誘電転移を示す交互積層型電荷移動錯体DMTTF-QBr_nCl_{4-n}で観測されたコヒーレント振動の起源を考察するために、ブルーム・エメリー・グリフィス模型を量子的に拡張し、その厳密な波動関数の時間発展を計算したところ、量子相転移近傍でコヒーレント振動の振幅が増大することがわかった。

(3) 強相関電子系に光照射をして導入されたキャリアの寿命は一般に短い。その起源を探るため異なる型の電子格子相互作用を持つ1次元電子模型において、光励起された電子系から格子系へのエネルギー移動率を調べた。通常は考慮されていない型の電子格子相互作用が効いている可能性を示した。

(4) 絶縁相において互いにとても似た水平型電荷秩序をもつ擬2次元有機塩の α 型および θ 型の(BEDT-TTF)₂Xは、異なる光誘起ダイナミクスをもつが、その起源を明らかにした。 α 型塩は、高温金属相ですでに電荷不均化が起きているが、それは低対称な結晶構造における運動エネルギーに由来する。低温におけるわずかな格子歪みはさらなる電荷不均化を生むが、局所的な現象なので、光を局所的に照射するだけで解消し全体に波及する。 θ 型塩は、高温金属相でみられる高対称な結晶構造のままでは、異なる秩序がせめぎ合って

フラストレートしていたはずである。実際には低温で分子面の回転に伴って電荷ストライプ全体が強く安定化するため、光励起されたストライプだけが融け全体に広がらない。

3. 現在までの達成度

①当初の計画以上に進展している。

(理由) 本研究においてプログラム開発することにより可能になった、電子相関をフルに取り入れた波動関数に基づく非平衡電子格子ダイナミクスの計算によって、それまで謎だった光誘起電子状態の解明や、わずかな結晶構造の違いが大きな相転移挙動の違いに至ることなどの説明を、行うことができた。

4. 今後の研究の推進方策

(1) 実験結果を説明するという観点からは、近年になって急速に向上した時間分解能により新たに見えている、超高速の分子振動が重要だと考えている。これが電子の移動積分と同程度であるために、フォノンの量子性が現れて、電子運動と量子的に干渉することが予想されるからである。今後期待される実験研究の進展に備え、フォノンの量子効果を取り入れた時間発展の計算を行うべく、プログラム開発を行う。

(2) 光誘起動的挙動で明らかになる現象は、相転移のような協調的現象だけでなく、励起子とポーラロンの生成分離などの素過程がある。これは異なる物質の界面で特に重要な課題である。フォノンの量子性による効果については、これまで系統的な理論研究はされておらず、これに対処できるように、予備的な計算をして要点を押さえておく。

5. 代表的な研究成果

(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 25 件)

- ① K. Yonemitsu and N. Maeshima, "Coupling-Dependent Rates of Energy Transfers from Photoexcited Mott Insulators to Lattice Vibrations," Phys. Rev. B 79 (2009) 125118 (6 pages). 査読有
- ② K. Yonemitsu, "Enhanced Coherent Dynamics near a Transition between Neutral Quantum-Paraelectric and Ionic Ferroelectric Phases in the Quantum Blume-Emery-Griffiths Model," Phys. Rev. B 78 (2008) 205102 (5 pages). 査読有
- ③ K. Yonemitsu and K. Nasu, "Theory of Photoinduced Phase Transitions in Itinerant Electron Systems," Phys. Rep.

465 (2008) 1-60. 査読有

- ④ K. Yonemitsu and N. Maeshima, "Photoinduced Melting of Charge Order in a Quarter-Filled Electron System Coupled with Different Types of Phonons," Phys. Rev. B 76 (2007) 075105 (6 pages). 査読有

[学会発表] (計 40 件)

- ① K. Yonemitsu, "Photoinduced Melting and Charge Order in Quarter-Filled Organic Conductors: Itinerant Electron Systems with Competing Interactions," Yamada Conference LXIII, 3rd International Conference on "Photoinduced Phase Transitions and Cooperative Phenomena," November 11, 2008, Osaka, Japan.

[図書] (計 2 件)

- ① 米満賢治、日本化学会、「理論が解き明かす光誘起相転移」、化学と工業 (Chemistry & Chemical Industry) 62 (2009) 892-894, 3 pages.

[その他]

ホームページ

<http://magellan.ims.ac.jp/research-0-j.htm>