

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 3 日現在

機関番号：32641

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2014

課題番号：24740244

研究課題名(和文) 強相関電子系の秩序相における新奇な非平衡現象の理論

研究課題名(英文) Theory for novel nonequilibrium phenomena in strongly correlated electron systems

研究代表者

田中 康寛 (Tanaka, Yasuhiro)

中央大学・理工学部・助教

研究者番号：50541801

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,600,000円

研究成果の概要(和文)：金属電極に繋がれた絶縁体における電流電圧特性について、非平衡系の理論を用いた研究を行った。まず、有機導体 β -(meso-DMBEDT-TTF) $2PF_6$ における実験を念頭に、電荷整列のある絶縁体を考え、電圧印加によってその電荷整列がどのように壊され電流が流れるかを調べた。その結果、電荷整列が残った状態で電流が流れる非平衡系特有の相が現れる可能性を見出した。また、電極のある系での理論解析結果、とくに負性微分抵抗(電圧の増加に伴い電流が減少する振る舞い)の起源を調べるため、より単純化されたモデルに対し厳密な解析を行い、その出現条件を明らかにした。

研究成果の概要(英文)：Current-voltage characteristics in insulators attached to metallic electrodes have been studied theoretically. For an organic conductor β -(meso-DMBEDT-TTF) $2PF_6$, which exhibits an insulating state with charge order, I have investigated how the applied bias destroys the charge-ordered insulator when the current flows. I found that a novel bias-induced conductive state in which the charge-order remain finite. I also clarified conditions for the appearance of negative differential resistance in systems with electrodes by studying a simplified model exactly.

研究分野：物性理論

キーワード：非線形伝導 電流電圧特性 負性微分抵抗 絶縁破壊

1. 研究開始当初の背景

強相関電子系で見られる非平衡現象は、光誘起相転移や非線形伝導など実験的に多くの例が知られており、近年盛んに研究が行われている。しかし、非平衡系における解析の困難さから、理論研究はこれまで単純化されたモデル計算に限られていた。この現状を踏まえ、電流電圧特性などの非平衡定常状態を調べることを目的に非平衡グリーン関数を用いた新しい手法の開発に取り組んできた。これにより、平均場近似の範囲内で電子間相互作用に加え、電子格子相互作用を含めた計算が可能になりつつある。強相関電子系の中で、有機導体と呼ばれる一連の物質群では、これらの相互作用が互いに競合あるいは協力しあって現れる興味深い現象が多い。そのような物質の個性にまで踏み込んだ非平衡系の理解を目指したいと考え、本研究を着想するに至った。

2. 研究の目的

(1) 擬二次元有機導体 $-(\text{meso-DMBEDT-TTF})_2\text{PF}_6$ における非線形伝導の機構解明を目的とした研究を行った。この物質は、低温で構造歪みが起こり、それと同時にチェッカーボード型と呼ばれる電荷秩序の絶縁体となることが知られている。この系に電圧をかけると電荷秩序が融解し、それに伴って非線形伝導が現れることが実験で観測された。本研究では、平衡状態における電荷秩序の起源と、電圧印加による秩序の融解および非線形伝導の機構を明らかにすることを目的とする。

(2) 電極に繋がれた絶縁体における負性微分抵抗の起源を明らかにすることを目的とした研究を行った。以前の研究で、型有機導体における非線形伝導を調べた際、絶縁体部分にかかる電圧が大きくなると電流が減少するという負性微分抵抗が生じることを見出した[1]。これは絶縁体部分がひとつのサイトからなるポイントコンタクトモデルでは以前から知られた結果[2]であるが、バンドを持つ絶縁体ではこれまで調べられていなかった。ここでは理論的な観点からどのような条件下で負性微分抵抗が生じるのかを、電極を含めたモデルに基づいて明らかにすることを目的としている。

3. 研究の方法

(1) まず、 $-(\text{meso-DMBEDT-TTF})_2\text{PF}_6$ の構造歪みを伴う電荷秩序の起源を調べるため、実験から推測される電子格子相互作用を考慮した拡張ハバードモデルを構築する。そのモデルを平均場近似の範囲で調べ、電子間および電子格子間の相互作用をパラメータとしてチェッカーボード型電荷秩序が再現されるか明らかにする。その結果を踏まえ、非平衡グリーン関数法を用いて電流電圧特性を計算し、電荷秩序融解による非線形伝導を

調べる。特に電荷秩序が電流によりどのように影響を受けるか調べ、平衡状態とは異なる準安定状態が生じるか明らかにする。

(2) 電極に繋がれた一次元バンド絶縁体において電流電圧特性を計算し、負性微分抵抗が現れる条件を明らかにする。具体的には、電極と絶縁体部分のバンド幅をパラメータとし、非平衡グリーン関数法により厳密に電流電圧特性を計算する。その際、計算の簡単化のためによく用いられる Wide band limit(電極のバンド幅が無限大と仮定する近似、以下 WDL と略)を用いる場合と用いない場合の両方を考慮し、負性微分抵抗がどのように影響を受けるか調べる。また、絶縁体内部のポテンシャル勾配の効果についても調べる。

4. 研究成果

(1) 有機導体 $-(\text{meso-DMBEDT-TTF})_2\text{PF}_6$ に対し、電子格子相互作用を考慮した拡張ハバードモデルを平均場近似で解析した結果、構造歪みを伴ったチェッカーボード型電荷秩序(CCO)が再現されるパラメータ領域があることが分かった(図1)。

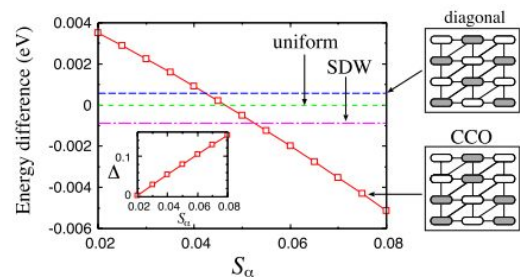


図1：様々な電荷秩序パターンの基底状態のエネルギー。電荷秩序のない状態(uniform)を基準としている。横軸は電子格子相互作用の大きさを表す。

この結果を用いて、非平衡グリーン関数法により、電流電圧特性と電圧下での電荷分布、および格子ひずみを計算した。その結果、ある電圧で絶縁体の電荷秩序が融解しはじめ、電流が流れることが分かった(図2)。さらに、この電荷秩序融解により完全に秩序が消失するのではなく、格子ひずみと電荷秩序が弱く残った状態のまま電流が流れるという結果を見出した(図3)。これは電圧下での新しい非平衡準安定状態の出現を示唆している(発表論文)。

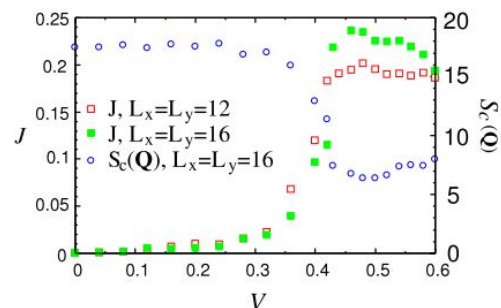


図2：電流電圧(J-V)特性と、電荷構造因子(Sc(Q))の電圧依存性。

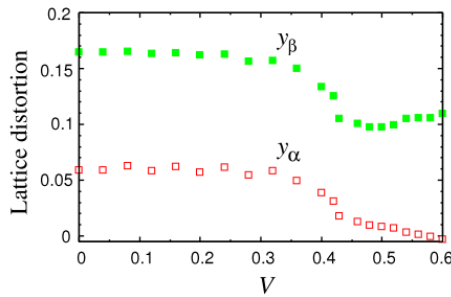


図3：構造歪みの大きさ(y_α, y_β)の電圧依存性。

(2)電極に繋がれた一次元のバンド絶縁体を考え、非平衡グリーン関数法により電流電圧特性を計算した。計算ではWBLを用いるか否か、また絶縁体内部のポテンシャル勾配を考えるか否かで4つの場合を考え(表1)、それぞれについて負性微分抵抗が生じるか検

条件	ポテンシャル勾配	WBL	NDR
(i)	あり	なし	
(ii)	あり	あり	
(iii)	なし	なし	
(iv)	なし	あり	×

表1：計算に用いた条件と負性微分抵抗(NDR)の有無のまとめ。

討した。その結果、まずWBLを用いない場合には、電極のバンド幅が有限であることにより負性微分抵抗が常に生じることが分かった。これは以前からポイントコンタクトモデル[2]で知られていた結果と本質的に同じである。また、ポテンシャル勾配については、絶縁体の有効バンド幅を減少させる効果をもたらすことが分かり、これによっても負性微分抵抗が生じる。以上の結果は、電子の伝導に関して非弾性散乱の効果を考慮しない場合には一般に得られると考えられる。したがって、仮に絶縁体の記述に対して平均場近似を用いた場合にもそれが当てはまることになる。これにより、今回の研究結果と同様な負性微分抵抗が、 α -型有機導体や $(meso\text{-DMBEDT-TTF})_2\text{PF}_6$ に対する計算でも生じる原因を特定することができた。

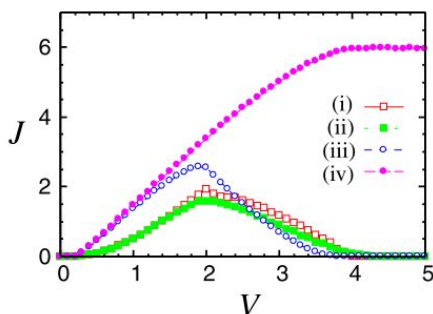


図4：電極に繋がれた一次元バンド絶縁体の電流電圧(J-V)特性。(i)-(iv)はそれぞれ表1の計算条件に対応している。

さらに、負性微分抵抗が生じる閾電圧を求めるため、電極のバンド幅をパラメータとして電流電圧特性を計算した。その結果、電極のバンド幅と、絶縁体のバンド幅をそれぞれ W_E と W とすると、電圧の閾値は $W_E/2$ と $W/2$ の小さい方で与えられることが分かった(発表論文)。

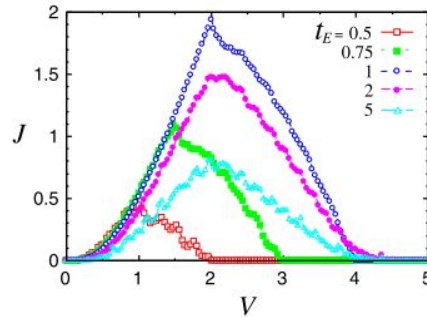


図5：電流電圧特性の電極のバンド幅依存性。 t_E は電極内の電子のトランスファー積分を表す。

(3)有機導体 $\alpha\text{-(BEDT-TTF)}_2\text{I}_3$ は高温では金属状態であるが、温度を下げると電荷秩序の絶縁体へと相転移する。この物質に対する最近のポンププローブ実験で、高温金属相に強いパルス光照射をすると、低温の電荷秩序が回復することを示唆する振る舞いが見られた。これは、これまでの光誘起相転移の典型的な振る舞いとは逆であり、その機構に興味を持たれる。この実験結果を、連続波光を照射した系で過去に知られた動的局在の観点から解析するため、電子のトランスファー積分を変化させたときの電荷秩序転移温度を計算し、光誘起電荷秩序化が現実的に可能かどうか調べた。その結果、光照射によってトランスファー積分が実効的に減少し、転移温度が上昇したと考えることで実験結果が理解できることが分かった(発表論文)。

<引用文献>

- [1] Y. Tanaka and K. Yonemitsu, "Nonlinear Conduction by Melting of Stripe-Type Charge Order in Organic Conductors with Triangular Lattices", J. Phys. Soc. Jpn., 80 (2011) 103702.
- [2] I. Báldea and H. Köppel, "Sources of negative differential resistance in electric nanotransport", Phys. Rev. B 81 (2010) 193401.

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4件)

T. Ishikawa, Y. Sagae, Y. Naitoh, Y. Kawakami, H. Itoh, K. Yamamoto, K. Yakushi, H. Kishida, T. Sasaki, S. Ishihara, Y. Tanaka, K. Yonemitsu, and S. Iwai, "Optical freezing of charge motion in an organic conductor", Nature Communications, 査読有, 5 (2014) 5528.

DOI:10.1038/ncomms6528

Y. Tanaka and K. Yonemitsu, "Roles of Potential Gradient and Electrode Bandwidth on Negative Differential Resistance in One-Dimensional Band Insulator", J. Phys. Soc. Jpn., 査読有, 83 (2014) 124704.

DOI:http://dx.doi.org/10.7566/JPSJ.83.124704

Y. Tanaka and K. Yonemitsu, "Charge order and possible bias-induced metastable state in organic conductor β -(*meso*-DMBEDT-TTF)₂PF₆: Effects of structural distortion", J. Phys. Cond. Matter, 査読有, 25 (2013) 465603.

DOI:10.1088/0953-8984/25/46/465603

〔学会発表〕(計11件)

田中康寛、米満賢治、電極に繋がれたバンド絶縁体における負性微分抵抗の起源について、日本物理学会、2015年3月22日、早稲田大学(東京都新宿区)

田中康寛、有機導体における電子相関効果および非線形伝導について、第一回計算分子科学の若手理論研究会、2015年3月4日、戸田屋(石川県金沢市)

Y. Tanaka, "Effects of electron correlation in organic conductor α -(BEDT-TTF)₂I₃", Gordon Research Conference on Conductivity and Magnetism in Molecular Materials, 2014年8月5日、Lewiston ME (アメリカ)

田中康寛、有機導体 α -(BEDT-TTF)₂I₃ における電子相関効果、日本物理学会、2014年3月29日、東海大学(神奈川県平塚市)

田中康寛、有機導体 α -(BEDT-TTF)₂I₃ の基底状態における電子相関効果、日本物理学会、2013年9月25日、徳島大学(徳島県徳島市)

田中康寛、有機導体 β -(*meso*-DMBEDT-TTF)₂PF₆ における電荷秩序と非線形伝導、強相関電子系理論の最前線-若手によるオープンイノベーション、2012年12月14日、勝浦観光ホテル(和歌山県那智勝浦町)

田中康寛、米満賢治、二次元有機導体における電場による電荷秩序の融解と非線形伝導、2012年9月20日、横浜国立大学(神奈川県横浜市)

Y. Tanaka and K. Yonemitsu, "Nonlinear conduction by melting of charge order in quasi-two-dimensional organic conductors", International Conference on Electronic States and Phases Induced by Electric or Optical Impacts, 2012年9月11日、Orsay(フランス)

Y. Tanaka and K. Yonemitsu, "Nonequilibrium states and I-V characteristics in one-dimensional band and Mott insulators attached to electrodes", The 19th International Conference on Magnetism with Strongly Correlated Electron Systems, 2012年7月10日、プサン(韓国)

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

田中 康寛 (TANAKA, Yasuhiro)

中央大学・理工学部・助教

研究者番号：50541801