

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 8 日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26400324

研究課題名(和文) 光誘起相転移における格子歪みダイナミクス

研究課題名(英文) Dynamics of lattice distortion in photoinduced phase transitions

研究代表者

西野 正理 (Nishino, Masamichi)

国立研究開発法人物質・材料研究機構・国際ナノアーキテクトニクス研究拠点・主幹研究員

研究者番号：80391217

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：スピントロニクス(SC)系などが示す光、温度、圧力など様々な刺激による相転移機構において、格子変形に伴う歪みで生じる弾性相互作用による協力的効果の解明が重要である。我々は、二次元SC系において、これまで知られていない臨界現象や新たな相が存在することを理論的に示した。また、関連するある種の長距離相互作用系における有限サイズ効果による帯磁率の発散的振る舞いの機構を解明した。さらに光照射後の高スピン状態の生成ダイナミクスを調べる計算方法の開発を進めた。

研究成果の概要(英文)：It is important to clarify the cooperative effect by the elastic interaction induced by lattice distortion for the mechanism of phase transitions by light irradiation, temperature change, pressure change, etc. in spin-crossover (SC) materials. We showed theoretically that new critical phenomena and new phases can exist in two-dimensional SC systems. We also showed the mechanism which brings divergence-like enhancement by a finite-size effect in a system with a kind of long-range interactions, related to SC systems. We developed a computational method to study the growth of the high spin state after photo-irradiation.

研究分野：物性理論、統計力学

キーワード：光誘起相転移 スピントロニクス 格子歪み 長距離相互作用 フラストレーション 臨界現象
核生成 光スイッチング

1. 研究開始当初の背景

(1) 光誘起相転移を示すスピクロスオーバー(SC)系においては、その状態変化の過程で、パイロニックなカップリングを通して分子の構造変化と電子状態変化が連動するため、格子変形に伴う歪みにより弾性相互作用が生じる。この弾性相互作用の性質は非自明であり、協力現象の発現に重要であることが分かっている。この協力的相互作用の性質の理解が相転移機構に重要である。

(2)最近の実験技術の発達により、SC系などの光誘起現象において、スピンと格子それぞれのダイナミクスの特徴が観察されるようになってきた。その特徴を説明するためには、微視的なダイナミクスの理論的に基づく理論解析、計算手法の発達が必須となっている。

2. 研究の目的

(1) これまでの我々の研究で、格子形状と短距離相互作用の種類によって、弾性相互作用の協力的効果が大きく異なることが分かっているが、フラストレーションがある場合なども対象とし、この効果について詳しく調べ、SC系の相転移機構、さらに広く格子歪みによる弾性相互作用が相転移に与える普遍的な効果について新たな知見を得る。

(2) 光誘起現象に見られるスピンや格子のダイナミクスの特徴を解析するための理論および計算手法を開発する。また理論解析による予想を検証するための実験手法の考案も行う。

3. 研究の方法

(1)新しい理論解析および計算アルゴリズムの開発を行う。これまで分子動力学やモンテカルロ法などをSC転移や光誘起現象を扱うために開発してきたが、これら各種手法を発展させる。特に、光誘起現象のダイナミクスの解析には、我々が最近開発した様々な時間スケールへの応用が可能であるハイブリッド法を発展させる。理論と実験が協力して解析を行う。

4. 研究成果

(1) まず、スピクロスオーバー三角格子系に焦点を当て、短距離相互作用と格子自由度(弾性相互作用)の競合、協力による秩序化の性質について詳しく調べた。温度変化によってLow spin (LS) 相、High spin (HS) 相の二相共存線を変化させた時に現れる臨界現象の解析を行った。LSとHSの分子の大きさの違いを露わに考慮したIsing系に、弾性相互作用を導入してSC系のモデルを構築した。次近接相互作用をもつ反強磁性イジング三角格子系(TIAFF)においては、double Berezinskii-Kosterlitz-Thouless(BKT) 転移が起こる事が知られている。TIAFF系に格

子の自由度(およびエントロピー効果)を加えたSC系のモデルにおいては(図1)、その弾性相互作用の実効的長距離相互作用としての効果のために、臨界現象の特徴が変化することを見いだした。この2次元SC系が示すBKT中間温度相における端点(高温側と低温側の相転移点)の性質に関して、新しいユニバーサリティーを持った2次転移(低温側)とBKT転移(高温側)が起こり得る事を明らかにし、BKT中間相端点の相転移の性質に新しいシナリオがあることを見出した。弾性相互作用が比較的弱い場合、BKT相は存在するが、そこでの機構は、その高温側において弾性相互作用の効果は現れずBKT転移が起こるが、低温側では、弾性相互作用の効果によりBKT転移とは異なる転移が起こる。

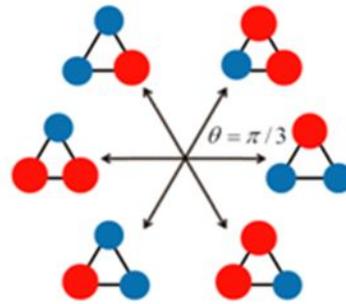


図1 スピクロスオーバー系三角格子のフェリ磁性様状態。基底状態は6重縮退。

(2)2段階相転移を示すSC系の相転移機構と光誘起相の性質に関して、レンヌ大の実験グループと共同研究を行い、実験的検証と理論解析を行った。注目するSC系においては、中間温度相においては、HS-HS-LS-LSのオーダーを持つストライプ構造が現われる事、光誘起high spin (HS) 相からの緩和は2段階で起き、局所的なHS-HS-LS-LSオーダーが見られること、さらにANNNI-like modelを用いた理論解析で実験の特徴をよく説明出来ることなどを示した(図2)。また、フロリダ

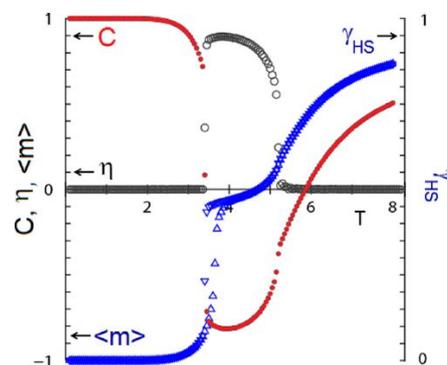


図2 二段階SC転移。秩序変数 $\langle m \rangle$, 相関 C の温度依存性。

州立大との共同研究において、反強磁性様相互作用と長距離相互作用を有す SC 系のモデルの解析を行い、中間的な強さの長距離相互作用の場合に、短距離力あるいは長距離力単独では出現しない非自明な相と臨界点 (critical endpoint および mean-field critical point) が現われる事を明らかにした。

(3) SC系で見られる長距離相互作用の理解を深めるため、フラストレート相互作用を持つ反強磁性 Ising 三角格子系において、副格子内外それぞれに長距離相互作用を持つモデルの相転移、臨界現象の解析を行った。この系は、パラメータ領域により 2 種類の相変化を示す。温度と共に無秩序相、部分無秩序相、3 副格子フェリ磁性相、2 副格子フェリ磁性相へ変化する場合と、無秩序相から 2 副格子フェリ磁性相へ変化する場合がある。

バルクでは無秩序相から 2 副格子フェリ磁性相への転移において、帯磁率は発散しないが、有限サイズ効果によって帯磁率の発散的振る舞いが起こる事(図 3)、その原因が部分無秩序相と 2 副格子フェリ磁性相の構造(縮退)にある事、等を明らかにした。またそれらの相転移現象は、一般化 6 状態クロックモデルの長距離相互作用モデルのあるパラメータ領域で起こる物理として捉えられることも明らかにした。

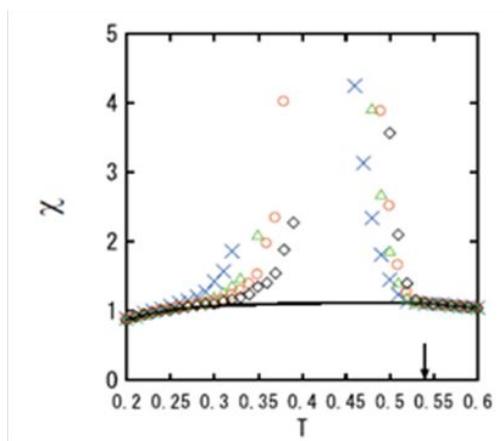


図 3 三角格子長距離相互作用系における非自明な帯磁率の発散的振舞

また、パルスレーザー照射後に見られる SC 系の elastic step 現象に関して、アレクサンデル・ヨアン・クザ大学の理論グループおよびレンヌ大の実験グループと共同で、mechanoelastic model におけるモデル化を行い、光照射後の高スピン相の生成において弾性相互作用が協力的に働く動的な特徴を捉えることに成功した。これは、この現象に関する初の理論的研究である。

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 20 件)

M. Nishino, Y. Toga, S. Miyashita, H. Akai, A. Sakuma, and S. Hiroswawa, Atomistic-model study of temperature-dependent domain walls in the neodymium permanent magnet Nd₂Fe₁₄B, *Phys. Rev. B* **95**, 094429-(1-7) (2017). 査読有 DOI: 10.1103/PhysRevB.95.094429

S. Hiroswawa, M. Nishino and S. Miyashita, Perspectives for high-performance permanent magnets: applications, coercivity, and new materials, *Adv. Nat. Sci.: Nanosci. Nanotechnol.* **8** (2017) 013002 (1-12). 査読有 <https://doi.org/10.1088/2043-6254/aa597c>

M. Nishino and S. Miyashita, Anomalous finite-size effect due to quasidegenerate phases in triangular antiferromagnets with long-range interactions and mapping to the generalized six-state clock model

Phys. Rev. B **94**, 184434-(1-13) (2016). 査読有 DOI:10.1103/PhysRevB.94.184434

S. Mohakud, S. Andraus, M. Nishino, A. Sakuma, and S. Miyashita, Temperature dependence of the threshold magnetic field for nucleation and domain wall propagation in an inhomogeneous structure with grain boundary, *Phys. Rev. B* **94**, 054430-(1-14) (2016). 査読有 DOI: 10.1103/PhysRevB.94.054430

J. Nishitani, T. Nagashima, M. Lippmaa, and T. Suemoto, Optical pump-THz probe analysis of long-lived d-electrons and relaxation to self-trapped exciton states in MnO, *Appl. Phys. Lett.* **108**, 162101-(1-5) (2016). 査読有 DOI:10.1063/1.4946992

H. Kamioka, J. Nishitani, H. Tsukada, R. Yamaguchi and T. Suemoto, Investigation of insulator-metal transition in Ti₄O₇ using terahertz probe pulse”, *Appl. Phys. Lett.* **108**, 071908-(1-4) (2016). 査読有 DOI:10.1063/1.4942602

T. Suemoto, R. Fukaya, A. Asahara, H. Watanabe, H. Tokoro and S. Ohkoshi, Dynamics of photoinduced phase transitions in a Prussian blue analog studied by CN vibrational spectroscopy”, *Current Inorganic Chemistry*, **6**, 10-25 (2016). 査読有

H. Watanabe, K. Tanaka, Nicolas Bréfuel, H. Cailleau, J-F L’etard, S. Ravy, P. Fertey, M. Nishino, S. Miyashita, and E. Collet, Ordering phenomena of high-spin/low-spin states in stepwise spin-crossover materials described by the ANNNI model

Phys. Rev. B **93**, 014419-(1-12) (2016). 査読有 DOI: 10.1103/PhysRevB.93.014419

P. A. Rikvold, G. Brown, S. Miyashita C. Omand and M. Nishino, Equilibrium, metastability, and hysteresis in a model spin-crossover material with nearest-neighbor antiferromagnetic-like and

long-range ferromagnetic-like interactions, *Phys. Rev. B* **93**, 64109-(1-13) (2016). 査読有
DOI: 10.1103/PhysRevB.93.064109

J. Nishitani, T. Nagashima and T. Suemoto, Magnetic-excitation-assisted photoluminescence from self-trapped exciton states in MnO, *J. Phys. Condens. Matter*, **28**, 016004-(1-6) (2016).
DOI: 10.1088/0953-8984/28/1/016004

M. Nishino and S. Miyashita, Termination of the Berezinskii-Kosterlitz-Thouless phase with a new critical universality in spincrossover systems *Phys. Rev. B* **92**, 184404-(1-7) (2015). 査読有
DOI: 10.1103/PhysRevB.92.184404

S. Maezawa, H. Watanabe, M. Takeda, K. Kuroda, T. Someya, I. Matsuda and T. Suemoto, Optically detecting the edge-state of a three-dimensional topological insulator under ambient conditions by ultrafast infrared photoluminescence spectroscopy, *Sci. Rep.* **5**, 16443, (2015). 査読有 DOI: 10.1038/srep16443

H. Watanabe, T. Kawasaki, T. Iimori, F. Komori and T. Suemoto, Layer number dependence of carrier lifetime in graphenes observed using time-resolved midinfrared luminescence, *Chem. Phys. Lett.*, **637**, 58-62 (2015). 査読有
DOI: 10.1016/j.cplett.2015.07.046

H. Soma, Y. Uenaka, A. Asahara, T. Suemoto and T. Uchino, Ultraviolet stimulated emission from high-temperature-annealed MgO microcrystals at room temperature, *Appl. Phys. Lett.*, **106**, 041116-(1-5), (2015) 査読有 DOI:10.1063/1.4907321

K. Yamaguchi, T. Kurihara, H. Watanabe, M. Nakajima, and T. Suemoto, Dynamics of photoinduced change of magnetoanisotropy parameter in orthoferrites probed with terahertz excited coherent spin precession with terahertz excited coherent spin precession, *Phys. Rev. B* **92**, 064404-(1-5) (2015). 査読有
DOI: 10.1103/PhysRevB.92.064404

Masamichi Nishino and Seiji Miyashita, Realization of the thermal equilibrium in inhomogeneous magnetic systems by the Landau-Lifshitz-Gilbert equation with stochastic noise, and its dynamical aspects *Phys. Rev. B* **91**, 134411-(1-13) (2015). 査読有
DOI: 10.1103/PhysRevB.91.134411

Cristian Enachescu, Masamichi Nishino, Seiji Miyashita, Kamel Boukheddaden, Francois Varret and Per Arne Rikvold, Shape effects on the cluster spreading process of spin-crossover compounds analyzed within an elastic model with Eden and Kawasaki dynamics, *Phys. Rev. B* **91**, 104102-(1-9) (2014). 査読有
DOI: 10.1103/PhysRevB.91.104102

T. Kurihara, K. Nakamura, K. Yamaguchi, Y. Sekine, Y. Saito, M. Nakajima, K. Oto, H. Watanabe, and T. Suemoto,

Enhanced spin-precession dynamics in a spin-metamaterial coupled resonator observed in terahertz time-domain measurements, *Phys. Rev. B* **90**, 144408 (2014). 査読有
DOI: 10.1103/PhysRevB.90.144408.

Akifumi Asahara, Shaoqiang Chen, Takashi Ito, Masahiro Yoshita, Wenjie Liu, Baoping Zhang, Tohru Suemoto and Hidefumi Akiyama, Direct generation of 2-ps blue pulses from gain-switched InGaN VCSEL assessed by up-conversion technique *Scientific Reports*, **4**, 6401 (2014). 査読有 DOI: 10.1038/srep06401.

A. Asahara, H. Watanabe, H. Tokoro, S. Ohkoshi and T. Suemoto, Ultrafast dynamics of photoinduced semiconductor-to-metal transition in optical switching nano-oxide Ti3O5, *Phys. Rev. B* **90**, 014303 (1-7) (2014). 査読有
DOI: 10.1103/PhysRevB.90.014303.

〔学会発表〕(計 20 件)

西野正理, 宮下精二, Per Arne Rikvold, 反強磁性短距離相互作用と Husimi-Temperley 型長距離相互作用の競合による新奇な相図
日本物理学会 第 72 回年次大会 2017/3/14
大阪大学 (大阪府豊中市)

M. Nishino,
Multi-step spin crossover and various orderings in triangular lattice systems,
Phase Transition and Dynamical properties of Spin Transition Materials (PDSTM) 2016 /11/27,
Gandia (Valencia, Spain).

S. Miyashita,
Elastic effect on spin-crossover transition
Phase Transition and Dynamical properties of Spin Transition Materials (PDSTM) 2016 /11/27,
Gandia (Valencia, Spain).

西野正理, 宮下精二, Per Arne Rikvold, Two-step スピントロニクスオーバー系の弾性力による長距離相互作用と反強磁性的短距離相互作用の競合における揺らぎの効果
日本物理学会秋季大会 2016 /9/14 金沢大学 (石川県金沢市)

西野正理, 宮下精二
一般化 6 状態クロックモデルにおける長距離相互作用の効果と三角格子反強磁性体の臨界現象
日本物理学会 2016 第 71 回年次大会
2016/3/19-22 東北学院大学泉キャンパス (宮城県仙台市)

アンドラウス セルヒオ, 西野正理, 宮下精二, 不均一磁気ドメイン構造での核生成とドメイン壁ピニングの温度依存性
日本物理学会 2016 第 71 回年次大会
2016/3/19-22 東北学院大学泉キャンパス (宮城県仙台市)

末元徹, 光による物質制御とそのダイナミクス, 日本物理学会 2016 第 71 回年次大会 (招待講演) 2016/3/19-22 東北学院大学泉キャンパス (宮城県仙台市)

栗原貴之, 渡邊浩, 軽部修太郎, 音賢一, 大谷義近, 中嶋誠, 末元徹, ErFeO₃ の THz 誘起スピン再配列相転移初期過程におけるドメイン生成メカニズム, 日本物理学会 2016 第 71 回年次大会, 2016/3/19-22 東北学院大学泉キャンパス(宮城県仙台市)

西野正理,

Berezinskii-Kosterlitz-Thouless 中間温度相における新しい臨界現象, 東大物性研短期研究会「スピン系物理の深化と最前線」, 2015/11/16-18, 東大物性研(千葉県柏市)

西野正理, 宮下精二,

フラストレートした三角格子反強磁性体における弾性相互作用および長距離相互作用の効果,

日本物理学会 2015 秋季大会, 2015/9/16-19, 関西大学千里山キャンパス(大阪府吹田市)

末元徹, 半金属およびディラック電子系における超高速発光, 日本物理学会 2015 秋季大会, 2015/9/16-19 関西大学千里山キャンパス(大阪府吹田市)

西野正理, 宮下精二,

三角格子スピנקロスオーバー系の Kosterlitz-Thouless 相における弾性相互作用の効果,

日本物理学会 2015/3/24 早稲田大学(東京都)

西谷純一, 浅原彰文, 栗原貴之, 長島健, 末元徹 遷移金属酸化物 MnO における光励起 d 電子ダイナミクス

日本物理学会 2015/3/23 早稲田大学(東京都)

中村圭太, 栗原貴之, 山口啓太, 渡邊浩, 末元徹, Dy_{0.7}Er_{0.3}FeO₃ における磁気共鳴に対する外部磁場効果の THz-TDS による観測 日本物理学会 2015/3/23 早稲田大学(東京都)

西野正理, 古典スピンフラストレーション系における弾性相互作用の効果, CROSSroads of Users and J-PARC 「スピン系とフラストレーション」(招待講演), 2015/2/3 いばらき量子ビーム研究センター(茨城県那珂郡)

西野正理, スピנקロスオーバー系における臨界現象, 第 8 回三機関連携「量子複雑現象」研究会

2015/1/6 spring8 (兵庫県佐用郡)

Masamichi Nishino¹, Seiji Miyashita, Cristian Enachescu, Kamel Boukheddaden and Francois Varret,

Static and dynamical aspects of spin-crossover ordering induced by short-range and elastic long-range interactions, PDSTM 2014 (招待講演), 2014/11/21 東大本郷(東京都)

S. Miyashita, H. Watanabe, and M. Nishino,

Successive phase transitions of spin-crossover ordering due to HS-LS spatial structure due to competing of short-range interactions, PDSTM 2014(招待講演), 2014/11/21 東大本郷(東京都)

Tohru Suemoto,

Ultrafast Dynamics of Photo-reversible Insulator-Metal Phase Transitions in Nano-crystalline Ti₃O₅, PDSTM 2014 (招待講演), 2014/11/21 東大本郷(東京都)

西野正理, 宮下精二,

フラストレーション系における格子変形を伴う弾性相互作用の効果, 日本物理学会 2014/9/10, 中部大学

〔図書〕(計 1 件)

宮下精二, 西野正理

シーエムシー出版,

省/脱 Dy ネオジム磁石と新規永久磁石の開発 第 III 編 第 9 章「統計物理学による磁気モーメントの反転に対する核生成理論の構築」 165-171 (2015)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

取得状況(計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

http://samurai.nims.go.jp/NISHINO_Masamichi-j.html

6. 研究組織

(1) 研究代表者

西野 正理 (NISHINO, Masamichi)

国立研究開発法人物質・材料研究機構・国際ナノアーキテクトニクス研究拠点・主幹研究員

研究者番号: 80391217

(2) 研究分担者

宮下 精二 (MIYASHITA, Seiji)

東京大学・理学系研究科・教授

研究者番号: 10143372

末元 徹 (SUEMOTO, Toru)

東京大学・物性研究所・教授

研究者番号: 50134052