

令和元年6月13日現在

機関番号：82401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2018

課題番号：26400377

研究課題名(和文) 電荷秩序およびスピン転移を示す強相関物質における光誘起量子ダイナミクスの理論

研究課題名(英文) Theory of photo-induced quantum dynamics in strongly correlated materials showing charge and spin transitions

研究代表者

妹尾 仁嗣 (Seo, Hitoshi)

国立研究開発法人理化学研究所・開拓研究本部・専任研究員

研究者番号：30415054

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：強相関電子系の示す秩序構造にともなう金属絶縁体転移など、基本的な対称性の破れによる相転移をみせる分子性物質群を対象として、短パルスレーザー光の照射による光誘起量子ダイナミクス現象の基礎的な理論をボトムアップ的に構築した。初期ダイナミクスにおける光と相互作用する電子系の結合を考慮したシミュレーションによって、実験においてより長いタイムスケールでしばしば観測され議論されるドメインの生成や広がりなどの非一様な状態変化がどのようなメカニズムによって生じているのかを、単純化したモデルを使って明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究の学術的特色は、ボトムアップ型に理論的知見を積み上げることで実際に観測されている現象に迫る点である。それぞれの物質系での現象を俯瞰的に見直し、今後の物質設計へのフィードバックも含めた強相関系の光誘起ダイナミクスにおけるguiding principleの構築が挙げられる。これらは、応用研究にも繋がり得る光スイッチング現象の基礎原理解明に貢献することはもちろん、より広い凝縮分子系一般への展開も期待される。すなわち、光合成中心やヘムタンパク質に代表される金属錯体系生体関連物質への展開も考えられ、境界分野へのインパクトを与え将来的に新分野開拓の可能性も十分ある。

研究成果の概要(英文)：We have built out the basic theory of photo-induced quantum dynamics induced by short-pulse laser light irradiated into strongly-correlated molecular solids showing typical symmetry breaking such as those with metal-insulator transitions. By numerically simulating a simplified model for initial stage dynamics, considering the coupling between the incident light and the interacting fermion system, we have elucidated the mechanism of the emergence of inhomogeneous state experimentally observed, through domain creation and growth.

研究分野：物性理論

キーワード：光誘起相転移 電荷秩序 量子ダイナミクス

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

短パルスレーザー照射によって物性を制御する試みが、豊富な物性を示す物質系に対し盛んにされるようになり、そこで観測される量子ダイナミクス現象のトリガーとなる初期過程が強相関理論モデルの範疇で説明できるのか、むしろ付加的な要素が不可欠になっているのか、メカニズム解明に絡む重要なテーマが顕著となってきた。その背景には、近年のレーザー技術の発展に伴って時間分解能が向上し、従来の構造変化が起きた後の時間スケール(分子性固体では典型的にはピコ秒程度)から、フェムト秒オーダーの実験により電子的初期過程が「見える」ようになりつつあり、従ってミクロな理論との直接比較が可能となり理論の重要度が増していた。

2. 研究の目的

実験で観測される、短パルスレーザー光による電子励起 電子系の初期ダイナミクス 格子系も含めた複雑なダイナミクス、という時間軸に沿った流れを、ミクロな電子状態から出発したモデルに対し、時間依存シュレーディンガー方程式の実時間発展を直接数値計算によってシミュレーションすることで、それぞれの果たす役割やメカニズムをボトムアップ的に調べる。その結果、ハミルトニアン構造としては同形であるために、俯瞰的な見方によって光誘起ダイナミクス現象のメカニズムを系統的に明らかにしたい。

3. 研究の方法

本研究の中心となる照射による物理量の時間発展計算は、パルス励起光を取り込んだ有効モデルに対し、時間依存シュレーディンガー方程式を数値的に解くことにより求める。コード開発・整備を行った上で、電荷秩序系のミニマルな強相関モデルを設定し大きなサイズのクラスタを扱えるハートリーフォック近似法を用いて調べる。また一方で、スピン転移を示す金属錯体系物質群も視野に入れ、第一原理計算による有効モデル化のスキーム構築を行う。

4. 研究成果

(1) $\text{Pd}(\text{dmit})_2$ 分子が擬 2 次元的な構造を持つ一連の物質群のミクロな有効モデル化を、第一原理計算を元に行った。本系は複数の分子軌道が低エネルギー電子状態に効いていることが知られているが、有効モデル化により分子の一部に局在した「フラグメント分子軌道」の描像を提唱した。さらに相互作用効果を平均場近似の範囲内で調べ、スピン・電荷・軌道状態の解析を行った。実験的に調べられている反強磁性状態・電荷格子秩序状態を再現することができ、それらの安定性が何に起因しているのか、重要なパラメータを同定することができた。

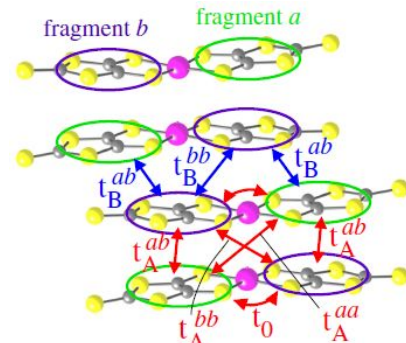


図 1: $\text{Pd}(\text{dmit})_2$ 系のフラグメント分子軌道の模式図

(2) 三角格子上のスピンレスフェルミオン模型に対して数値的厳密対角化によりパルスレーザー照射の効果を調べた。平衡状態に表れる 3 種類の電荷秩序状態はそれぞれ異なる時間発展ダイナミクスが見られることが分かった。すなわち、「縦ストライプ」と呼ばれる電荷秩序は単調に減衰していくのに対し、「水平ストライプ」は「3 倍周期」の電荷秩序に転移する。その背後には平衡状態でも重要な役割を果たす幾何学的フラストレーションが存在することが分かった。

(3) 実験で議論されている非一様性の効果を調べるため、簡略化した 1 次元スピンレスフェルミオン模型に対してハートリーフォック近似によってパルスレーザー照射後の量子ダイナミクスを調べた。一様な電荷秩序状態を初期状態として設定したときには、ダイナミクスは予想されたようにコヒーレントな時間発展を示し、絶縁体ギャップエネルギーを超えた励起による光ドーピング効果による秩序の不安定化のみならず、ギャップ内に特徴的な共鳴モードが存在することが判明した。これは電荷秩序状態に固有の集団励起モードであり、共鳴的に変化が大きくなることを見出した。一方で、ドメイン壁(キルク)が一つある初期状態に光を照射すると、先の共鳴モードにパルス光の周波数が近い場合に非一様性が現れ、空間的にキルク位置を種として時間とともに非一様領域が広がっていく。特に、光強度が大きいと、電荷秩序構造自体が消失した領域が、やはり時間とともに広がっていく「融解」現象が現れる。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計 11 件)

H. Seo, Y. Tanaka, and S. Ishihara, Photo-induced collective mode, inhomogeneity, and melting in a charge order system, Phys. Rev. B 98 (2018), art. no. 235150 (8 pages + Supplemental Material) [査読有].

H. Aizawa, T. Koretsune, K. Kuroki, and H. Seo, Electronic Structure Calculation and

Superconductivity in λ -(BETS)₂GaCl₄, J. Phys. Soc. Jpn. 87 (2018) No. 9, art. no. 093701 (5 pages) [査読有].

H. Watanabe, H. Seo, and S. Yunoki, Phase competition and superconductivity in κ -(BEDT-TTF)₂X: Importance of intermolecular Coulomb interactions, J. Phys. Soc. Jpn. 87 (2017) No. 3, art. no. 033703 (5 pages + Supplemental Material) [査読有].

M. Tsuchiizu, H. Yoshioka, and H. Seo, Phase Competition, Solitons, and Domain Walls in Neutral-Ionic Transition Systems, J. Phys. Soc. Jpn. 86 (2016) No. 10, art. no. 104705 (10 pages) [査読有].

M. Naka, H. Seo, and Y. Motome, Theory of valence transition in BiNiO₃, Phys. Rev. Lett. 116 (2016) No. 5, art. no. 056402 (5 pages) [査読有].

H. Hashimoto, H. Matsueda, H. Seo, and S. Ishihara, Photo-Induced Phase Transition in Charge Order Systems -Charge Frustration and Interplay with Lattice-, J. Phys. Soc. Jpn. 84 (2015) No. 11, art. no. 113702 (5 pages) [査読有].

T. Tsumuraya, H. Seo, R. Kato, and T. Miyazaki, First-principles study of hydrogen-bonded molecular conductor κ -H₃(Cat-EDT-TTF/ST)₂, Phys. Rev. B 92 (2015) No. 3, art. no. 035101 (9 pages) [査読有].

H. Seo, T. Tsumuraya, M. Tsuchiizu, T. Miyazaki, and R. Kato, Fragment Model Study of Molecular Multiorbital System β^2 -Pd(dmit)₂, J. Phys. Soc. Jpn. 84 (2015) No. 4, art. no. 044716 (10 pages) [査読有].

H. Hashimoto, H. Matsueda, H. Seo, and S. Ishihara, Photo-Induced Dynamics in Charge-Frustrated Systems, J. Phys. Soc. Jpn. 83 (2014) No. 12, art. no. 123703 (4 pages) [査読有].

Y. Otsuka, H. Seo, and Y. Motome, Magnetic Field Effect in One-Dimensional Charge Ordering Systems, J. Phys. Soc. Jpn. 83 (2014) No. 8, art. no. 083703 (4 pages) [査読有].

M. Naka and H. Seo, Long-Period Charge Correlations in Charge-Frustrated Molecular θ -(BEDT-TTF)₂X, J. Phys. Soc. Jpn. 83 (2014) No. 5, art. no. 053706 (5 pages) [査読有].

[学会発表](計 10件)

H. Seo (invited talk), Ground state properties of κ -BEDT-TTF₂X; 3/4-filled case and carrier doping, 4th International Conference on Functional Materials Science 2018 (ICFMS2018), Bali, Indonesia, November 15, 2018.

妹尾仁嗣, 田中康寛, 石原純夫, 2次元電荷秩序系における光誘起初期ダイナミクスの理論的研究日本物理学会 2018年秋季大会(同志社大学), 2018年9月9日.

妹尾仁嗣, 田中康寛, 石原純夫, 1次元電荷秩序系における光誘起現象の理論的研究 非一様性と融解, 日本物理学会第73回年次大会(東京理科大学), 2018年3月25日.

H. Seo (invited talk), Theoretical Studies on Molecular Conductors as Strongly Correlated Electron Systems, International Workshop on Organic Molecule Systems, Parkroyal Hotel, Batu Feringghi, Pulau Pinang, Malaysia, August 2, 2017.

妹尾仁嗣, 石原純夫, 平均場近似による電荷秩序系の光誘起初期ダイナミクスの研究 II, 日本物理学会第72回年次大会(大阪大学), 2017年3月19日.

妹尾仁嗣, 石原純夫, 平均場近似による電荷秩序系の光誘起初期ダイナミクスの研究, 日本物理学会 2016年秋季大会(金沢大学), 2016年9月13日.

妹尾仁嗣, 巨大負熱膨張の理論: 金属間電荷移動と電荷秩序の観点から, 日本物理学会 2015年秋季大会領域8シンポジウム「複合自由度が生み出す巨大エントロピーとその制御」(関西大学), 2015年9月17日.

H. Seo (invited talk), Effective model study of molecular conductors: application to Pd(dmit)₂ systems, 1st RIKEN-Sophia Joint Symposium: Recent Progresses on the Muon-Site Estimation, Sophia Univ., Tokyo, Japan, December 15, 2014.

妹尾仁嗣, 圓谷貴夫, 土射津昌久, 宮崎剛, 加藤礼三, 多軌道系 X[Pd(dmit)₂]₂ におけるスピンおよび電荷格子秩序相の競合, 日本物理学会 2014年秋季大会(中部大学), 2014年9月9日.

H. Seo (contributed talk), Fragment model and phase competition in Pd(dmit)₂-based multi-orbital molecular conductors, International Conference on Science and Technology of Synthetic Metals (ICSM2014), Turku, Finland, July 2, 2014.

6. 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名:

ローマ字氏名:

所属研究機関名:

部局名：

職名：

研究者番号（8桁）：

(2)研究協力者

研究協力者氏名：石原純夫

ローマ字氏名：Sumio Ishihara

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。