

機関番号：13302

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2009～2010

課題番号：21740222

研究課題名（和文） 低次元電子格子系における時間分解光電子分光の理論研究

研究課題名（英文） Theoretical study of time-resolved photoemission spectroscopy for low-dimensional electron-phonon system

研究代表者

JaeDong Lee（ジェドン リー）

北陸先端科学技術大学院大学・マテリアルサイエンス研究科・講師

研究者番号：50447695

研究成果の概要（和文）：

時間分解光電子分光は最先端の分光技術で、外部の光学的励起によってフェルミ面近くの電子構造の実時間変化を観測することができる。その時間分解光電子分光は理論的接近もまだ確立されない、理論・実験ともに挑戦的な課題である。我々はその理論の独自開発を通じて、1次元有機絶縁体と類似2次元ギャップレス半導体であるグラファイトにおける時間分解光電子分光の研究を理論的に行った。この研究で、電子または格子が起こす超高速動力学的電子構造への影響に対する新しい微視的な理解が出来た。

研究成果の概要（英文）：

Time-resolved photoemission spectroscopy (TRPES) is the state-of-the-art spectroscopy technology which makes it possible to monitor the real-time change of the electronic structure (especially, near the Fermi level) under the optical excitation. It is a challenge not only in experiment but also in theory in a sense that its theoretical formulation is still lacking. Through developing our original formulation, we theoretically study TRPES in 1-dimensional organic insulator, and graphite, quasi 2-dimensional gapless semiconductor. Novel microscopic understanding about the effects of ultrafast dynamics of electron and phonon on the underlying electronic structure could be made.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	2,500,000	750,000	3,250,000
2010年度	500,000	150,000	650,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,000,000	900,000	3,900,000

研究分野：物性物理理論・光学・超高速動力学

科研費の分科・細目：物理学・物性 I

キーワード：光物性・超高速現象

1. 研究開始当初の背景

光誘起絶縁体金属転移は光を利用する光物質科学領域の最新の課題で、学術的な興味だけでなく光学的方法によって電子デバイ

スの超高速制御等への応用にも役立つ問題である。例え、光誘起絶縁体金属転移は、既存の物質から新しい相を探し出し、新しい機能性の発見を可能にする。また、その新しい相は $\alpha(100)$ フェム秒から $\alpha(1)$ ピコ秒程度の

超高速の時間スケールに発現するから現代の高速デバイスを制御する超高速スイッチにもその応用が考えられる。でも、光誘起絶縁体金属転移現象の物理的理解はそんなに簡単ではなく、いろいろな物理的原理が複雑な方式に含まれている。実際、絶縁体は生成原理やその特性に従っていくつかのカテゴリに分かれる。カテゴリによって観測される光誘起絶縁体金属転移のメカニズムと現象論の様子が当然違う。重要な基準の一つは、その絶縁体が格子の影響を持つのか持っていないのかである。格子の影響を持ってない、電子間のクーロン反発力が原因になる絶縁体はモット絶縁体とよばれる。異なるカテゴリにある絶縁体からの光誘起絶縁体金属転移の違う現象論の様子や物理的違いが普段の時間分解光学分光には簡単に出て来ない。一方、時間分解光電子分光はフェルミ面での電子状態の実時間観測が可能だから、絶縁体からの光誘起絶縁体金属転移の違いが簡単に見破れるし、今のうち一番注目される時間分解分光法になった。時間分解光電子分光は理論的接近がまだ確立されていないから、理論の面にも挑戦的な課題である。

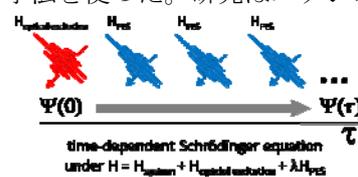
2. 研究の目的

最近の研究で我々は、相互作用する電子系の光誘起超高速動力学と時間分解光電子分光の記述ができる独自の理論開発に専念した。ここに独自開発中の時間分解光電子分光の理論を格子の量子力学的影響まで考慮に入れるように引き伸ばす。ここには簡単ではない概念的難しさがある。格子は量子力学的特性によって、問題を扱う数学的な空間（ヒルベルト空間と呼ばれる）が無限大に大きくなる。その無限大に大きい数学的な空間を適度に有限にするのが第一歩である。有限にするためには格子効果の大きさについての適当な仮定が必要になる。一方、格子の効果を古典力学的に取り扱う時は、この問題は避けられる。これは、今までほとんどの研究が断熱近似の土台で格子を古典力学的に取り扱っている理由でもある。その上で、電子だけの1次元モット絶縁体や電子-格子相互作用による電荷秩序がある1次元有機絶縁体、また類似2次元ギャップレス半導体であるグラファイト等における時間分解光電子分光を理論的に研究する。特に、グラファイトは産業上の多くの利用が期待されているフラレン、カーボンナノチューブ、グラフェンの炭素基盤物質の種物質でもある。光誘起絶縁体金属転移を受けている各絶縁体の、フェルミ面での電子状態の独特な動力学的応答から、たとえば、電子構造変化の連続性・非連続性、外部光源による光学励起条件、電子構造変化の時間スケール、または非放射緩和

(nonradiative relaxation)の強さ等から、その相転移メカニズムとお互いの異なる点をより明らかにする。

3. 研究の方法

コンピュータを用いて相互作用する電子や格子の運動についての量子力学的なシミュレーションをする。もっと詳しく言えば、「N個の電子 \oplus N-1個の電子+1個の光電子」と構成されるヒルベルト空間という数学的な空間で時間依存多体論的シュレディンガー方程式を解くのである。時間依存シュレディンガー方程式の解に相当する波動関数から、光電子の分布が得られる。シミュレーションは巨大な数値計算だから並列計算の手法を使った。研究はスケジュール的には次のように行



図：計算方式の概要

2009年度：

1次元有機絶縁体、(EDO-TTF)₂PF₆ (EDO-TTF=エチレンジオキシ-テトラチアフルバレン)の光誘起絶縁体金属転移と時間分解光電子分光の研究に集中した。理論内に格子を含めるためにヒルベルト空間を拡張する必要があった。(EDO-TTF)₂PF₆の基底状態を得るためには二種類のフォノンが(ボンドフォノンと電荷密度フォノン)必要する。フォノンは格子の量子力学の表現である。形式的には、そのヒルベルト空間は「N個の電子+ボンドフォノン+電荷密度フォノン \oplus N-1個の電子+1個の光電子+ボンドフォノン+電荷密度フォノン」になる。しかし、実際、フォノンの量子力学的な特性によれば必要なヒルベルト空間の大きさは無限大になるはずだったが、有効に必要な大きさは電子-格子間の相互作用の強さによって決定されることに着目して大きさを近似した。1次元有機絶縁体の研究結果は、1次元モット絶縁体の結果と比較・分析された。

2010年度：

類似2次元ギャップレス半導体であるグラファイトについて同様の研究を行った。グラファイトはフラレン、カーボンナノチューブ、グラフェンの炭素基盤物質の種物質である。一方、グラファイト自体も、ディラックフェルミオンの存在、電子構造による独特な電子・格子の動力学、電荷移動特性等が観測できる興味深いシステムである。必要なヒルベルト空間の形式的構成は前の1次元有機絶縁体と同じで(つまり、「N個の電子+フォノン \oplus N-1個の電子+1個の光電子+フォノ

ン)、その大きさも同じに弱い相互作用を仮定して格子部分のヒルベルト空間の大きさを決定した。でも、グラファイトは2次元電子系だから、1次元系より大きなヒルベルト空間が必要になった。それが1次元有機絶縁体に比べて難しさになった。

4. 研究成果

まず、1次元有機絶縁体、(EDO-TTF)₂PF₆ (EDO-TTF=エチレンジオキシ-テトラチアフルバレン)における光誘起絶縁体金属転移を時間分解光電子分光から理論的に理解しようとした。この1次元有機絶縁体には、二種類のフォノン(ボンドフォノンと電荷密度フォノン)による基底状態に・・・10011001・・・の電荷秩序が起こる。1は電荷の蓄積、0は電荷の欠損を意味する。外部から光学的に励起すればその電荷秩序は融解して金属性が出る。これは従来の時間分解光学分光からもよく知っていることだ。我々は、この研究で、電荷秩序の融解とコヒーレントフォノンがお互いに相手を発生させながら、1次元有機絶縁体を金属相に導くのが分かった。特に、研究結果はこの系の光誘起相転移は熱によって、すなわち熱的フォノンによって起こる熱誘起絶縁体金属転移との違いを明確に見せてくれた。さらに、このコヒーレントフォノンの影響はフォノンが全く考慮されないモット絶縁体の光誘起相転移と比較すればよりドラマティックになる。モット絶縁体と違ってコヒーレントフォノンがあればバンドギャップより遥かに低エネルギー光でもバンドミキシングを起こすのが分かった。その以外にも、光誘起絶縁体金属転移が起きる時には、電子とフォノンの運動はお互い非断熱的だというのも分かった。その非断熱性は光誘起相転移の一つの共通点だという意見もあり、まだ関連の研究は世界的に進んでいるが、光誘起相転移の発生の判断基準になる可能性もある。これらの結果はコヒーレントフォノンが電子構造にどのような影響を与えるかを明らかにした初めての研究だと思える。

グラファイトは六角形の網の目状の炭素シートが規則正しく積あした化合物である。そして、産業上の多くの利用が期待されているフラーレン、カーボンナノチューブ、グラフェンの炭素基盤物質の種物質でもある。一方、グラファイト自体も、ディラックフェルミオンの存在、電子構造による独特な電子・格子の動力学、電荷移動特性等が観測できる興味深いシステムである。ディラックフェルミオンは低速の電子でありながら実量がまさにゼロで、光速で運動する実量ゼロの光子(フォトン)は似てる物理的性質を持つ。それがグラファイトを相対論的物質系とし、グラフ

ァイトにいろいろな特異性を与える。この特異性がグラファイトの高移動度電子デバイスとしての可能性、また低温磁性物理のテストベッドとしての可能性の原動力である。それで、この疑似2次元グラファイトが持つ独特の電子構造とその電子・格子動力学との相互関係を明らかにするため、我々はグラファイトでの光誘起超高速動力学を時間分解光電子分光で記述して新しい視点を示すようにした。実は、グラファイトはまだ格子の役割について厳しい論争がある物質であって、電子-格子の相互作用の強さ、格子効果による非放射緩和の時間スケール等についてまだ意見の一致はない状態である。より難しいのは不純物や結晶上の欠点によってその格子関連性質が大きく変わる可能性もあることだ。研究結果、非放射緩和はグラファイトのブリュアンゾーン対称点によって違いがあり、ディラックフェルミオンが存在するブリュアンゾーンのH点付近よりK点付近で大きくなるのが分かった。この結果は有効な電子・格子カップリングがH点付近よりK点付近でもっと強いということを意味する。最近の超高分解度角度分解光電子分光の結果と定性的に一致するのを分かった。

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2件)

1. H. Gomi and J.D. Lee, Theoretical study of time-resolved photoemission of graphite near Brillouin zone K and H points, Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena, **182**, 145 (2010). : 査読あり
2. J.D. Lee, Model for a photoinduced insulator-metal transition in a one dimensional quarter-filled organic salt: Evidence of a nonadiabatic charge-phonon coupling, Physical Review B, **80**, 165101 (2009). : 査読あり

[学会発表] (計2件)

1. J.D. Lee, Photoinduced insulator-metal transition of a one-dimensional quarter-filled organic salt, Cordon Research Conferences - Ultrafast Phenomena in Cooperative Systems, Galveston, USA, 28 February - 5 March, 2010.
2. J.D. Lee, Dynamical change of electronic structure under photoinduced insulator-metal

transition: theoretical study of time-resolved photoemission, Eleventh International Conference on Electronic Spectroscopy and Structure (ICES-11), Nara, Japan, 6-10 October, 2009.

〔図書〕（計 0 件）

〔産業財産権〕

○出願状況（計 0 件）

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

○取得状況（計 0 件）

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

JaeDong Lee (ジェドン リー)
北陸先端科学技術大学院大学・マテリアル
サイエンス研究科・講師
研究者番号：50447695

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：