

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 5 月 7 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2009～2011

課題番号：21540312

研究課題名（和文） 多自由度相関電子系における光誘起ダイナミクスの理論

研究課題名（英文） Theory of photo-induced dynamics in correlated electron system with multi-degrees of freedom

研究代表者

石原 純夫 (ISHIHARA SUMIO)

東北大学・大学院理学研究科・教授

研究者番号：30292262

研究成果の概要（和文）：

スピン、軌道などの多自由度を有する強相関電子系の光誘起現象や光誘起相転移現象の微視的機構を理論解析により明らかにする。特に、スピン秩序や軌道秩序、スピン状態（高スピン状態、低スピン状態）などの複数の自由度や秩序の変化を伴った光誘起現象の実時間ダイナミクスを、数値的ならびに解析的手法を用いて多角的に解析する。得られた結果を用いて実験の解釈を行うと共に、実験の指針を与える。

研究成果の概要（英文）：

Microscopic mechanisms of photo-induced phenomena and photo-induced phase transition in correlated electron systems with multi-degrees of freedom, e.g. spin and orbital, are revealed. In particular, photo-induced real-time dynamics in spin order, orbital order and spin-states (high spin/ low spin) are analyzed by utilizing the analytical and numerical methods. Obtained results are applied to interpretations for the recent experimental data.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	1,000,000	300,000	1,300,000
2010年度	900,000	270,000	1,170,000
2011年度	800,000	240,000	1,040,000
年度			
年度			
総計	2,700,000	810,000	3,510,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性I

キーワード：光誘起相転移、光物性、強相関電子系、ポンプ・プローブ法

1. 研究開始当初の背景

近年の超短パルス・レーザーや高速光学プローブの目覚ましい発展に伴い、様々な物質におけるポンプ・プローブ実験や光誘起相転移現象が盛んに研究されている。これは短パルス光を物質に照射することで、基底状態とは異なる電子相が過渡的にあるいは半恒久的に出現する現象である。特に強相関電子系にお

ける光照射実験では、半導体や金属と比べて応答が高速であり、また小さな摂動により絶縁体・金属転移や反強磁性・強磁性転移などの劇的な変化が出現することが特徴である。

研究代表者とその共同研究者は遷移金属化合物を中心とした強相関電子系を対象として、平衡状態における特異な物性現象や光応答について理論研究を行ってきた。またこ

これらの研究成果をもとに磁性の変化を伴う光誘起金属絶縁体転移についての研究に着手し、大規模数値計算法の開発と、ポンプ・プローブ分光の実時間シミュレーションの実施を世界に先駆けて行った。このような研究の進展にもかかわらず、相関電子系における照射後の初期過程や緩和過程における微視的なプロセス、特異な応答現象の発現機構について、いまだ多くのことが明らかにされていない。特に光と直接結合しないスピンや軌道の自由度が光誘起相転移現象に果たす役割について、基礎的な理解が進んでいない。

2. 研究の目的

多くの相関電子系では電子のスピンと軌道の自由度を有し、この秩序や揺らぎが新規な物性現象の起源となっている。光誘起相転移や光誘起現象においても照射による複数の自由度や秩序の変化が生じることで、劇的でかつ興味のある現象が見出されている。本研究では、このようなスピン、軌道などの多自由度を有する強相関電子系の光誘起現象を対象とする。これまで相関電子に対して行ってきた基底状態や光応答に関する研究成果、これにより得られた知識、ならびに最近我々が光励起状態に対して開発した実時間数値シミュレーション法を基礎として、多自由度系の光誘起相転移現象の微視的機構を明らかにすることを目的とする。特にスピンや軌道秩序、誘電秩序、スピン状態（高スピン状態、低スピン状態等）など、複数の自由度の変化を伴った光誘起相転移現象や光励起現象を対象として取り上げる。また最近の種々の時間分解実験法の発展を考慮して、電荷、スピン、軌道の実時間ダイナミクスを多角的に解析し、実験の際の指針を与える。

3. 研究の方法

通常、光により直接励起されるのは電子の電荷の自由度である。これが励起過程でスピンや軌道に及ぼす影響を明らかにすること、またスピンや軌道が存在することに起因する電荷の変化を明らかにすることが本研究の最終目的である。具体的な理論解析は次の3段階に分けることができる。(1) 光を照射する前の系の基底状態の解析、(2) 光励起した各固有状態の解析、(3) 光励起状態の時間発展の解析。ここでは特に(3)を中心に方法を述べる。主要となる計算は電子間相互作用が大きくかつ多自由度を有する電子系の実時間シミュレーションである。精度のよい計算には数値計算コードや解析計算手法の開発が不可欠である。物理量として従来計算を行ってきたエネルギーや過渡光吸収スペクトルに加えて、種々の相関関数、一電子励起スペクトル、電荷・スピン励起スペクトル等の

時間依存性を調べる。これにより近年急速に発展している、時間分解光電子分光法や時間分解X線発光分光法等のデータと直接比較が可能となる。特に以下ではテーマを二つに分けて、その研究方法について詳しく述べる。

1) 光誘起反強磁性絶縁体-強磁性金属転移におけるスピンの役割：マンガン酸化物における照射による反強磁性絶縁体-強磁性金属相転移現象を対象とし、磁気転移を伴った絶縁体-金属転移の機構を明らかにする。拡張された二重交換模型を、非制限ハートリー・フォック法と密度行列繰り込み群法(DMRG)により解析する。非制限ハートリー・フォック法による本格的な解析を行うと共に、DMRG法で一電子励起スペクトルやスピン励起スペクトル等の解析を行うことで電子状態とスピン状態の全容を明らかにする。

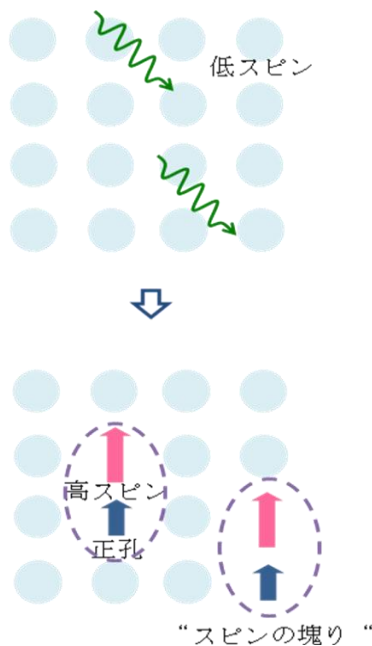
2) 伝導とスピン状態の変化を伴った光誘起相転移現象の解明：低スピン、高スピン、中間スピン状態などの複数のスピン状態を取り得る遷移金属イオンからなる系を対象とする。ポンプ・プローブ分光実験がなされているペロフスカイト型コバルト酸化物を取り上げる。計算の際にはスピン状態の自由度を取り入れた拡張多軌道ハバード模型を用いる。基底状態の計算結果を元に、時間依存ハートリー・フォック法とランチョス法を用いて、照射後の電荷とスピン状態のダイナミクスを解析する。

4. 研究成果

1) 光誘起反強磁性絶縁体-強磁性金属転移におけるスピンの役割：マンガン酸化物における照射による反強磁性絶縁体-強磁性金属相転移現象を対象とし、磁気転移を伴った絶縁体-金属転移の機構を明らかにした。特に伝導電子と強く結合する局在スピンの役割に注目し、スピン角運動量の保存に焦点を当てた。拡張された二重交換模型を用いて、密度行列繰り込み群法、ランチョス法ならびに非制限ハートリー・フォック法による電子状態の時間発展について解析を行った。反強磁性電荷秩序絶縁相に光を照射すると、電荷相関ならびに反強磁性相関ともに短時間のうちに崩壊し、光吸収スペクトルと一電子励起スペクトルの絶縁体ギャップ中に新しいピーク構造が現れることを見出した。またスピン相関の変化とギャップ内状態の成長する時間スケールは互いに強く相関しており、伝導電子の遷移強度により支配されていることを明らかにした。特に一次元の数値計算の結果は、キンク-半キンクモデルによりよく記述されることが分かった。更に照射後のスピンと電荷の時間発展ダイナミクスにおいて、励起光強度依存性を詳しく解析し、弱励起においてスピン自由度の果たす役割が顕著となることを見出した。これらの計算

結果をもとに、最近のマンガン酸化物におけるポンプ・プローブ実験の結果について解釈を行った。

2) 伝導とスピン状態の変化を伴った光誘起相転移現象の解明：低スピン，高スピン，中間スピン状態などの複数のスピン状態を取り得る遷移金属イオンからなる系を対象とした。ペロフスカイト型コバルト酸化物では、コバルト・イオンが複数のスピン状態をとることができスピン状態の自由度を有する。本研究課題では、この電子状態を記述するための理論モデルとして、2つの軌道を各サイトに導入した2軌道ハバードモデルを設定した。ここでは結晶場分裂とフント結合の大きさによって低スピン状態と高スピン状態を取りうる。まず光照射による準安定状態の解析を行うために、2軌道はハバードモデルから有効モデルを導出した。結晶場分裂とフント結合が競合する2つの絶縁相の境界において、光の照射により低スピン状態から高スピン状態へと変化することを見出した。この光誘起高スピン状態は、光により生成されるホールキャリアーと強磁性的な束縛状態を形成することで安定となることを見出し、束縛状態内の電子励起が光吸収スペクトルに特徴的なピーク構造を形成することを示した（下図参照）。次に光励起状態の時間発展に関して時間依存平均場近似法を用いて解析を行った。解析の結果、光により生成される電子とホールが対消滅を起こすことで高スピン状態が生成されることを見出し、これが時間分解光電子分光法により検証が可能であることを提唱した。



図：光により生成される高スピン-ホール束

縛状態の模式図。

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 14 件)

1. T. Watanabe, S. Ishihara, Superconductivity in ionic-Hubbard model on honeycomb lattice, Physica C (掲載決定), 査読有
2. J. Nasu and S. Ishihara, Orbital Compass Model as an Itinerant Electron System, Europhys. Lett. 97, 27002-1-6 (2012), 査読有
3. J. Ohara, Y. Kanamori and S. Ishihara, Novel Excitation-Density Dependence in Strongly Spin-Charge Coupled System, ACTA PHYSICA POLONICA A 121 355-358 (2012), 査読有
4. Y. Kanamori, H. Matsueda and S. Ishihara, Photoinduced Change in the Spin State of Itinerant Correlated Electron Systems, Phys. Rev. Lett. 107, 167403-1-5 (2011), 査読有
5. J. Nasu and S. Ishihara, Ring-Exchange Interaction in Doubly Degenerate Orbital System, J. Phys. Soc. Jpn. 80, 033704-1-4 (2011), 査読有
6. M. Naka and S. Ishihara, Charge dynamics of electronic ferroelectricity in geometrically frustrated lattice, J. Phys.: Conf. Ser. 320, 012083-1-6 (2011), 査読有
7. Y. Kanamori, H. Matsueda and S. Ishihara, Numerical Study of Photo-Induced Dynamics in Double-Exchange Model, Phys. Rev. B 82, 115101-1-14 (2010), 査読有
8. M. Naka and S. Ishihara, Electronic Ferroelectricity in a Dimer Mott Insulator, J. Phys. Soc. Jpn. 79, 063707-1-4 (2010), 査読有
9. S. Ishihara, Electronic ferroelectricity and frustration, J. Phys. Soc. Jpn. 79, 011010-1-11 (2010), 査読有
10. Y. Kanamori, H. Matsueda and S.

Ishihara, Dynamical Coupling and Separation of Multiple Degrees of Freedom in a Photoexcited Double-Exchange Systems, Phys. Rev. Lett. 103, 267401-1-4 (2009), 査読有

11. R. Suzuki, T. Watanabe and S. Ishihara, Spin state transition and phase separation in a multiorbital Hubbard model, Phys. Rev. B 80, 054410-1-5 (2009), 査読有

12. T. Tanaka and S. Ishihara, Dilution effect in correlated electron system with orbital degeneracy, Phys. Rev. B 79, 035109-1-11 (2009), 査読有

13. S. Ishihara, Y. Kanamori and H. Matsueda, Photo-induced phenomena in correlated electron system with multi-degree of freedom, J. Phys.: Conf. Ser. 148, 012056-1-4 (2009), 査読有

14. Y. Kanamori, H. Matsueda and S. Ishihara, Transient spectra of photo-excited states in double exchange model, J. Phys.: Conf. Ser. 148, 012060-1-3 (2009), 査読有

[学会発表] (計 38 件)

1. 石原純夫、電荷秩序系の誘電応答と光学応答～有機物と酸化物～、シンポジウム”有機電荷移動錯体の特異な電荷応答と相転移” 日本物理学会 第 67 回年次大会 2012 年 3 月 25 日、関西学院大学

2. 伊藤桂介、安生皓平、伊藤弘毅、岩井伸一郎、石原純夫、齋藤伸吾、狩野旬、永田知子、深田幸正、神戸高志、池田直、層状鉄酸化物 LuFe_2O_4 における光誘起相転移の層間ダイナミクス、日本物理学会 第 67 回年次大会 2012 年 3 月 24 日、関西学院大学

3. S. Ishihara, Y. Kanamori, H. Matsueda, and J. Ohara, Photo excited state in spin-charge coupled correlated electron system, APS March Meeting 2012 年 2 月 29 日, Boston, USA

4. S. Ishihara, J. Ohara, and Y. Kanamori, Photo-induced phenomena in correlated electron system with multi-degree of freedom, the 2012 Gordon Research Conference on: "Ultrafast Phenomena in Cooperative Systems" 2012 年 2 月 20 日 Galveston, USA

5. S. Ishihara, Time domain simulation in spin-charge coupled correlated electron systems, RIXS/REXS workshop 2012 年 1 月 17 日, Stanford, USA

6. S. Ishihara, Photo-induced phenomena in spin-charge coupled systems, 物構研シンポジウム '11 2011 年 12 月 6 日、つくば

7. 大原潤、金森悠、石原純夫、スピンの電荷結合系の特異な光励起状態、第 5 回物性科学領域横断研究会 2011 年 11 月 20 日、東北大学金属材料研究所

8. 石原純夫、多自由度相関電子系の光誘起ダイナミクス、DYCE 若手道場 2011 年 9 月 27 日、大阪大学豊中キャンパス

9. 伊藤桂介、安生皓平、伊藤弘毅、岩井伸一郎、石原純夫、齋藤伸吾、佐々木孝彦、ダイヤモンド絶縁体 κ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu $_2$ (CN) $_3$ における分極クラスターの光誘起 テラヘルツダイナミクス、日本物理学会 2011 年秋季大会、2011 年 9 月 22 日、富山大学

10. 伊藤弘毅、伊藤桂介、安生皓平、岩井伸一郎、石原純夫、齋藤伸吾、赤浜裕士、大石大輔、神戸高志、池田直、層状鉄酸化物 LuFe_2O_4 における電荷秩序の光融解、日本物理学会 2011 年秋季大会、2011 年 9 月 21 日、富山大学

11. 金森悠、大原潤、石原純夫、スピンの自由度のある相関電子系における光誘起スピン転移ダイナミクスの理論 日本物理学会 2011 年秋季大会、2011 年 9 月 21 日、富山大学

12. 大原潤、金森悠、石原純夫、電荷・スピン結合系における光誘起秩序融解ダイナミクスの特異な励起強度依存性 日本物理学会 2011 年秋季大会、2011 年 9 月 21 日、富山大学

13. S. Ishihara, Spin state degree of freedom and phase inhomogeneity in correlated electron system, Moscow International symposium on magnetism, 2011 年 8 月 25 日, Moscow, Russia

14. S. Ishihara, Stripe-type charge order and ferroelectricity in complex oxides, The 8th International Conference on Stripes and High T_c Superconductivity (STRIPES11) 2011 年 7 月 11 日, Roma, Italy

15. S. Ishihara, Photo-induced phase change in spin-charge correlated electron system, The 4th International Conference on Photoinduced Phase Transitions and Cooperative Phenomena (PIPT4) 2011年6月29日, Wroclaw, Poland
16. 大原潤、金森悠、石原純夫、強相関電子系における光誘起電荷・スピンドイナミクス of 励起強度特性、日本物理学会 第66回年次大会 2011年3月27日、新潟大学
17. 金森悠、大原潤、石原純夫、遍歴相関電子系における光誘起スピン転移の実時間ダイナミクス、日本物理学会 第66回年次大会 2011年3月27日、新潟大学
18. 伊藤弘毅、伊藤桂介、安生皓平、中屋秀貴、岩井伸一郎、石原純夫、齋藤伸吾、赤浜裕士、早川弘毅、大石大輔、神戸高志、池田直、層状鉄酸化物 LuFe_2O_4 の超高速テラヘルツ応答 II、日本物理学会 第66回年次大会 2011年3月27日、新潟大学
19. 石原純夫、遍歴電子系の光誘起現象、研究会「固体光誘起状態の非平衡ダイナミクス理論とその今後の展望」2011年2月16日、KEK
20. 金森悠、松枝宏明、石原純夫、スピン状態自由度のある相関電子系における光スピン転移と過渡スペクトル、2010年11月14日、東京大学
21. 大原潤、金森悠、石原純夫、強相関電子系における光誘起スピン・電荷秩序融解ダイナミクスの励起強度依存性と次元特性、第4回物性科学領域横断研究会—凝縮系科学の最前線—、2010年11月13日、東京大学
22. 金森悠、松枝宏明、石原純夫、スピン状態自由度のある相関電子系の光誘起ダイナミクス II、日本物理学会 2010年秋季大会、2010年9月25日、大阪府立大学
23. 大原潤、金森悠、石原純夫、電荷・スピン結合系における光誘起秩序融解、日本物理学会 2010年秋季大会、2010年9月23日、大阪府立大学
24. 伊藤弘毅、伊藤桂介、中屋秀貴、安生皓平、岩井伸一郎、石原純夫、齋藤伸吾、赤浜裕士、早川弘毅、大石大輔、神戸高志、池田直、層状鉄酸化物 LuFe_2O_4 の超高速テラヘルツ応答、日本物理学会 2010年秋季大会、2010年9月23日、大阪府立大学
25. 金森悠、松枝宏明、石原純夫、二重交換模型における光励起スペクトル、物性研短期研究会 「外部場の時間操作と実時間物理現象」 2010年6月22日、東京大学物性研究所
26. S. Ishihara, Ultrafast photo-induced phenomena in correlated electron systems with multi-degrees of freedom, The 17th International Conference on Dynamical Processes in Excited States of Solids (DPC'10) 2010年6月25日, Argonne National Laboratory, USA
27. 井上優太、金森悠、松枝宏明、石原純夫、スピン状態自由度のある相関電子系の光誘起ダイナミクス、日本物理学会第65回年次大会、2010年3月23日、岡山大学
28. 金森悠、松枝宏明、石原純夫、二重交換模型における光誘起スピン電荷ダイナミクスの励起光強度依存性、日本物理学会第65回年次大会、2010年3月20日、岡山大学
29. 伊藤弘毅、伊藤桂介、中谷秀樹、岩井伸一郎、石原純夫、齋藤伸吾、赤浜裕志、早川弘毅、大石大輔、神戸高志、池田直、層状鉄酸化物 LuFe_2O_4 のテラヘルツ分光、日本物理学会第65回年次大会、2010年3月20日、岡山大学
30. S. Ishihara, R. Suzuki, and T. Watanabe, Spin-state transition and phase separation in multi-orbital Hubbard model, APS March Meeting 2010, 2010年3月15日 Portland, USA
31. S. Ishihara, Theoretical study of ultrafast photo-induced phenomena in correlated electron systems with multi-degrees of freedom, Gordon Research Conference "Ultrafast Phenomena In Cooperative Systems" 2010年3月1日, Galveston, USA
32. 石原純夫、多自由度相関電子系における光誘起現象の理論、京都大学基礎物理学研究所研究会 兼 次世代スーパーコンピュータプロジェクト "ナノ分野グランドチャレンジ研究開発"連続研究会 「相関電子系における光誘起現象」 2010年12月11日、京都
33. 金森悠、石原純夫、スピン状態自由度のある相関電子系における光照射効果、京都大学基礎物理学研究所研究会 兼 次世代スーパーコンピュータプロジェクト "ナノ分野グランドチャレンジ研究開発"連続研究会

「相関電子系における光誘起現象」2009年12月10日、京都

34. S. Ishihara, Spin state transition and phase separation in correlated electron system, Joint IMR International Symposium High Magnetic Field Spin Science in 100T VI Application of High Magnetic Field for Condensed Matter and Material Science, 2009年12月8日, Sendai

35. Y. Kanamori, H. Matsueda, S. Ishihara, Photo-induced spin-charge dynamics in correlated electron system, RIKEN Workshop on Emergent Phenomena of Correlated Materials, 2009年12月3日, Wako

36. 鈴木亮、渡邊努、石原純夫、スピン状態自由度のある相関電子系におけるキャリアードーピング効果、物性科学領域横断研究会2009年11月29日、東京

37. 金森悠、井上優太、石原純夫、スピン状態自由度のある相関電子系における光誘起現象、日本物理学会2009年秋季大会、2009年9月26日、熊本大学

38. 伊藤桂介、中屋秀貴、高橋良幸、岩井伸一郎、斉藤伸吾、石原純夫、佐々木孝彦、山田重樹、有馬孝尚、 LaCoO_3 のテラヘルツ分光；定常スペクトルの温度依存性と超高速過渡応答 II、日本物理学会2009年秋季大会、2009年9月26日、熊本大学

[その他]

1. 日経産業新聞「スパコン京より100倍高速、一東北大、物理現象を解明」2011年11月18日

2. 日経プレスリリース、「光が作るスピンの塊り ～磁石でないものを光で磁石にする～」2011年10月15日

6. 研究組織

(1) 研究代表者

石原 純夫 (ISHIHARA SUMIO)
東北大学・大学院理学研究科・教授
研究者番号：30292262

(2) 連携研究者

岩井 伸一郎 (IWAI SHINICHIRO)
東北大学・大学院理学研究科・教授
研究者番号：60356524

松枝 宏明 (MATSUEDA HIROAKI)
仙台電波工業高等専門学校・准教授
研究者番号：20396518