

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 5 日現在

機関番号：12102

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2011～2013

課題番号：23740232

研究課題名(和文)光誘起相転移初期過程における超高速ダイナミクスの量子動力学的研究

研究課題名(英文)Quantum dynamical study of ultrafast dynamics in early processes of photoinduced phase transitions

研究代表者

前島 展也 (Maeshima, Nobuya)

筑波大学・数理物質系・講師

研究者番号：90390658

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円、(間接経費) 1,080,000円

研究成果の概要(和文)：物質の中には、光誘起相転移と呼ばれる、光照射により誘起される相転移現象を起こすものが多く存在する。本研究では、光照射直後の初期過程において実現する光励起状態の性質や照射後のダイナミクスの理論的解明を行った。特に擬1次元有機化合物を念頭に入れた1次元電子格子モデルや遷移金属酸化物の理論モデルである多軌道ハバードモデルにおける光励起状態や動的性質について数値的手法に基づき解析を行った。

研究成果の概要(英文)：There are many materials which show so-called photoinduced phase transitions, macroscopic changes of electronic states induced by photoirradiation. In this study, we theoretically clarify physical properties of photoexcited states generated immediately after the photoirradiation and the subsequent dynamics. In particular, we carry out numerical analysis of the photoexcited states and dynamical properties of one-dimensional (1D) electron-lattice systems corresponding to quasi-1D organic compounds and a multi-band Hubbard model which is a minimal model of transition metal oxides.

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：光物性 強相関系 光誘起相転移

1. 研究開始当初の背景

光誘起相転移とは、光の照射によって生じる巨視的な状態変化(相転移)を指し、古くはポリジアセチレンやスピンクロスオーバー錯体などの有機化合物から最近の遷移金属酸化物をはじめとする強相関電子系まで、多様な物質群で観測されている。光誘起相転移は、超高速光スイッチングデバイスの動作原理として期待されるほか、量子多体系における非平衡現象の典型的な題材であるため、その発現メカニズムの解明は応用・基礎の両面から極めて重要な研究課題である。

光誘起相転移現象においては、まず光照射直後に電子移動を伴う光励起状態が生成され、それが一種の種となってマクロな相変化が生じると考えられている。しかしこの最初に生じる光励起状態がどのようなものであるかについては不明な点が多く、そのためこの現象の初期過程に関する理解は十分進んでいないのが現状である。

2. 研究の目的

本申請者は、光誘起相転移現象の進行過程における初期状態およびその後続く超高速ダイナミクス of 理論的解明を研究目的とする。主に (1)低次元有機化合物における光誘起現象で重要となる電子格子相互作用の効果を調べるため 1次元パイエルス・ハバード模型の解析、(2)遷移金属酸化物の光励起直後の状態を調べるため、2軌道縮退ハバード模型における光励起状態の解析を行う。

3. 研究の方法

1次元パイエルス・ハバード模型の解析については前述の通り電子格子相互作用が重要となるため、密度行列繰り込み群(DMRG)と格子自由度に関する断熱近似を用い、光照射によって生じるキャリアがどのように緩和するのかを調べる。また緩和後の状態の解析のため、動的DMRG(DDMRG)を用いて光学応答スペクトルを数値的に求める。また厳密対角化により求めた有限系の波動関数を時間依存シュレディンガー方程式によって時間発展させて光誘起ダイナミクスを調べる。2軌道縮退ハバード模型については、3次元構造を有する最小単位である $2 \times 2 \times 2$ クラスタでの基底状態・光励起状態を厳密対角化法により求める。

4. 研究成果

1) 1次元スピン・パイエルス物質におけるポーラロン、ソリトン状態の光学応答に関する数値的解析: オンサイトクーロン斥力(U)の小さい1次元であるパイエルス物質、および、 U の大きいスピン・パイエルス物質に光照射を行うと、過渡的な光学吸収ピークが出現するが、その起源となる励起状態が共通のものなのか、 U と共に変化するのか等の点は不明なままであった。そこで単純な模型である 1

次元パイエルス・ハバード模型を用い、光照射直後に実現する状態の候補であるポーラロン・ソリトン状態における光学応答の解析を行った。その結果、ポーラロン状態[図 1(a)]において U の小さい領域で表れる 2つの吸収ピーク(A,B)が U の大きい領域で融合すること、そして U の大きい領域のみで表れる新奇な吸収ピーク(C)が存在することを明らかにした。同様に荷電ソリトン状態[図 1(b)]においても U が大きい領域と小さい領域とは起源の異なるピーク構造(D と E)が現れることが分かった。

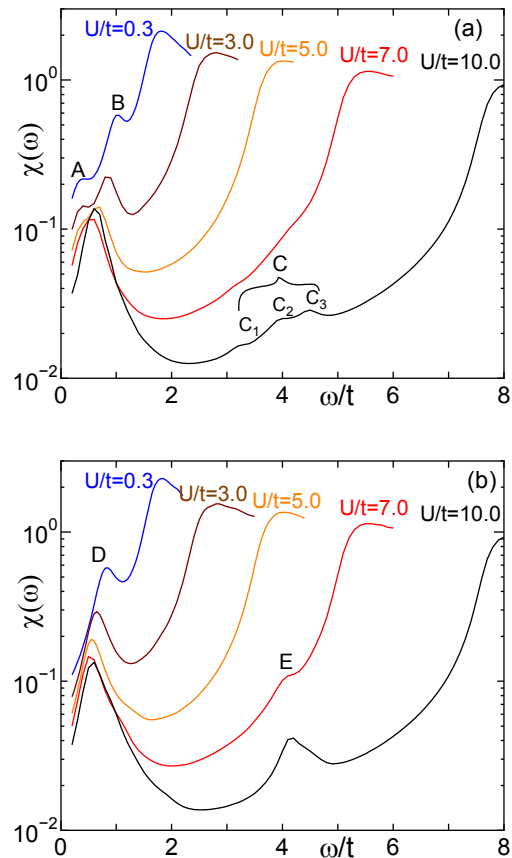


図 1: ポーラロン状態(a)と荷電ソリトン状態(b)における光学応答スペクトル $\chi(\omega)$ 。 U/t はオンサイトクーロン斥力(U)と飛び移り積分(t)の比。

また、有機スピン・パイエルス物質である R-TCNQ($R=K, Rb$)は、光照射により二量化が弱まり光学ギャップが減少することが既存の理論でうまく説明されていたが、光照射直後に現れるギャップ内光学吸収ピークの起源は不明なままであった。そこで、この系を記述する最も単純な模型である 1次元拡張パイエルス・ハバード模型において、光キャリア周辺の格子が断熱的に緩和した状態の光学応答を計算した。その結果、Rb-TCNQ の 2つのギャップ内ピークを説明するにはポーラロン状態が実現していると考えられるのが最も適切であること、高エネルギー側のギャップ内ピークはスピンと電荷の結合した励起状態が起源になっていることを示した。

2) 擬1次元ハロゲン架橋金属錯体の光誘起ダイナミクスに対する鎖間相互作用の効果に対する解析: 擬1次元ハロゲン架橋パラジウム錯体 $[Pd(chxn)_2]Br_2$ においては、平衡状態で電荷密度波(CDW)状態、照射によって過渡的に Mott 絶縁体を実現することが実験的に確認されている。また、この物質は比較的強い鎖間相互作用を有することが知られているが、上述の光誘起ダイナミクスに関する今までの理論的研究は純粋な一次元系に限られていた。そこで、格子自由度が弾性的な鎖間相互作用によって結合した擬1次元な理論模型を考え、そこに照射を行った場合の時間発展を数値シミュレーションによって調べた。その結果、Mott 絶縁体への相転移がおこる照射強度に強い鎖間相互作用依存性があることを見出した。

3) 2 軌道縮退ハバード模型における光励起状態のスピンの軌道相関に関する解析: 近年、ペロブスカイト型遷移金属酸化物における光誘起現象に関する実験的研究が数多く行われている。そのような例の一つにバナジウム酸化物 RVO_3 (R は Y もしくは希土類) に対する研究がある。LaVO₃ に対する実験では、照射直後の反射率スペクトルにおける低エネルギー成分の増大などの過渡的变化が明らかにされたが、同物質の特徴である低温領域でのスピン・軌道秩序の変化については今まで明確に議論されていなかった。そこで $2 \times 2 \times 2$ クラスタ上の2軌道ハバード模型に対する厳密対角化計算を行い、光キャリアがドープされた状態では、支配的なスピン・軌道相関が基底状態のものとは全く異なることを明らかにした。ここで励起光の偏光は実験の状況に対応させて z 軸に平行にとるものとしている。図 2(a)に示すように、基底状態においては広いパラメータ領域で C-AF スピン相関・G-AF 軌道相関が支配的となる。この結果は LaVO₃ で観測される長距離秩序と矛盾しない。一方光励起状態の結果[図 2(b)]が示す通り、広いかつ現実的なパラメータ領域で支配的となるのは A-AF スピン相関・ $C_{x/y}$ -AF 軌道相関である。ここで $C_{x/y}$ -AF とは軌道相関関数の構造因子の中で、波数 $k/\pi=[101]$ または $[011]$ に対応する成分が支配的となる状況を意味している。この結果は照射によってスピン・軌道秩序が大きく変化する可能性があることを示唆している。またなぜこのように基底状態と光励起状態とで大きく性質が異なるかを調べるために、 z 方向の飛び移り積分(t_z)と xy 平面内で飛び移り積分(t_{xy})の大きさの異なる tetragonal な $2 \times 2 \times 2$ クラスタ上での厳密対角化計算を行いスピン・軌道相関関数を調べた結果、基底状態は、cubic な場合($t_z = t_{xy}$)を含む広い領域で、系のスピン・軌道相関 dimer 的($t_z > t_{xy}$)な状況になっているのに対し、光励起状態では cubic な場合でも layer 的($t_z > t_{xy}$)な系に近いことが分かった。そしてその原因が xy 平面内を

遍歴する光励起キャリアにあることを示した。

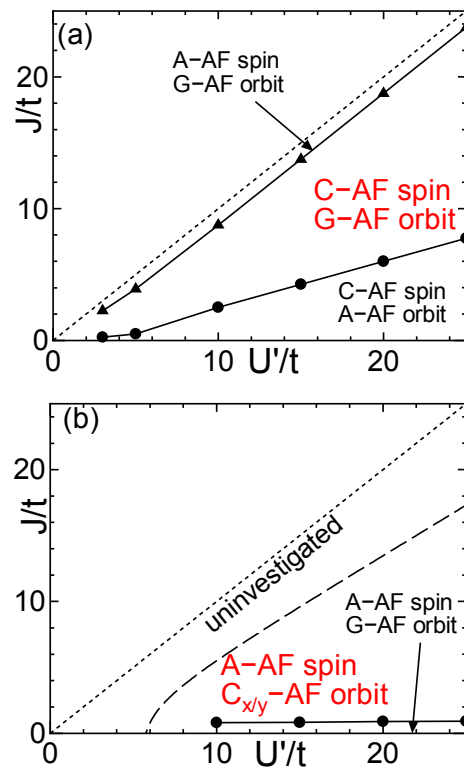


図 2: 基底状態(a)と光励起状態(b)における相図

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 4 件)

1. Hikaru Takenaka, Nobuya Maeshima and Ken-ichi Hino, “Spin and Orbital Correlations in Photoexcited States of Multi-Orbital Hubbard Models”, to be published in JPS Conference Proceedings (2014) 査読有

2. Nobuya Maeshima, Kosuke Moriya, and Ken-ichi Hino, “Optical response of polarons and solitons in one-dimensional Peierls-Hubbard model”, J. Phys. Soc. Jpn. **81**, 104708_1-7 (2012) 査読有 DOI: 10.1143/JPSJ.81.104708

3. H. Uemura, N. Maeshima, K. Yonemitsu, and H. Okamoto, “Dimerization-induced spin-charge coupling in one-dimensional Mott insulators revealed by femtosecond reflection spectroscopy of Rb-tetracyanoquinodimethane salts”, Phys. Rev. B **85**, 125112_1-7 (2012) 査読有 DOI: 10.1103/PhysRevB.85.125112

4. K. Moriya, N. Maeshima and K.I. Hino, “Dynamical properties of photogenerated polarons in one-dimensional dimerized Mott Insulators”, Eur. Phys. J. B **85**, 350_1-4 (2012)
査読有 DOI: 10.1140/epjb/e2012-30690-0

〔学会発表〕(計 7 件)

1. 井本文裕, 前島展也, 日野健一, “2 軌道縮退ハバード模型における光誘起ダイナミクス”, 日本物理学会 第 69 回年次大会, 2014 年 3 月 29 日, 東海大学

2. 前島展也, 竹中光, 日野健一, “2 軌道縮退ハバード模型における光励起状態のスピン・軌道相関 II”, 日本物理学会 2013 年秋季大会, 2013 年 9 月 26 日, 徳島大学

3. H. Takenaka, N. Maeshima, K. Hino, “Spin and Orbital Correlations in Photoexcited States of Multi-Orbital Hubbard Models” SCES2013, 2013 年 8 月 7 日, Tokyo, Japan

4. 竹中光, 前島展也, 日野健一, “2 軌道縮退ハバード模型における光励起状態のスピン・軌道相関”, 日本物理学会 第 68 回年次大会, 2013 年 3 月 28 日, 広島大学

5. Kosuke Moriya, Nobuya Maeshima, and Ken-ichi Hino¹, “Dynamical properties of photogenerated polarons and solitons in one-dimensional dimerized Mott insulators”, EXCON 2012, 2012 年 7 月 3 日, Groningen, the Netherlands

6. 齋藤陽平, 前島展也, 日野健一, “擬一次元八口ゲン架橋金属錯体の光誘起ダイナミクスにおける鎖間相互作用の効果 II”, 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

7. 齋藤陽平, 前島展也, 日野健一, “擬一次元八口ゲン架橋金属錯体の光誘起ダイナミクスにおける鎖間相互作用の効果”, 日本物理学会 2011 年秋季大会, 2011 年 9 月 21 日, 富山大学

6. 研究組織

(1) 研究代表者

前島 展也 (MAESHIMA NOBUYA)

筑波大学・数理物質系・講師

研究者番号: 90390658