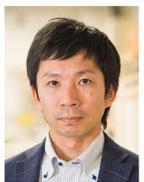


階層的準粒子の先端計測による可知化と分子材料研究の変革

	研究代表者	分子科学研究所・光分子科学研究領域・教授 解良 聡 (けら さとし)	研究者番号:10334202
	研究課題情報	課題番号: 23H05461 キーワード: 光電子分光、準粒子、振電相互作用、機能性分子、波動関数	研究期間: 2023年度~2027年度

なぜこの研究を行おうと思ったのか (研究の背景・目的)

● 研究の全体像

分子材料において既存の理論では取り扱い不能な現象が報告されつつある。その要因のひとつとして柔らかな物質特有の強い電子-フォノン(振動)結合とその階層性が見え始めてきた。本研究では電子と振動の結合系である古典的な準粒子ポーロンに「分子材料の新奇構造学」へ誘うための階層性描像を与える。高度に配列制御した分子結晶を試料とし、最先端分光計測と大規模理論シミュレーションを駆使することで、準粒子波動関数の対称性と時空間変動を評価する。これにより単なる分子構造・分子軌道とは違う視点で分子機能を可知化する方法論を確立し、分子とその集合体構造の設計理念を刷新する。高移動度・低熱失活材料のような未開の振電協奏物質の物性制御へ向けた、革新的な分子材料開発の道を切り拓く。

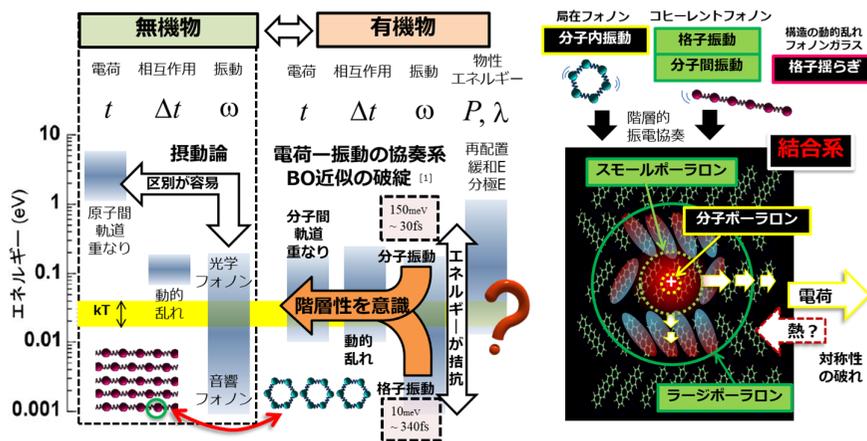


図1 無機物と有機分子固体の相互作用の違いと、分子固体で検討すべき準粒子の階層性

● 学術的問い：機能を司る「分子の形」とは？

分子材料は集合構造の僅かな差に敏感で、マクロな物性・機能との関連付けは容易ではない。電子とフォノンの結合系は準粒子ポーロンであるが、無機物のそれとは異なる独特な時間発展・空間異方向性を示し、各種材料の変換・輸送特性を支配している。分子は結合手やサイズだけでなく、固体における配向・配列によって電子局在性が異なる。さらに局在性はフォノンの影響を強く受けるが、それ自身も固体では構造階層性をもつため(分子内振動や格子振動)、両者の結合系であるポーロンの階層性は全く自明でない。これまでの階層性を無視したメカニズムの議論は限界があり、「分子の形」を新たな構造学的な起点とし、輸送する電荷とともに変貌するダイナミックな準粒子の形状描像の取得による機能の可知化が不可欠である。

Seeing the unseen!

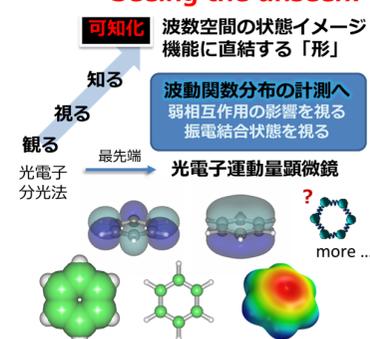


図2 分子機能計測法の開拓を目指す

● 階層形状を記録できる最先端光電子運動量顕微鏡の威力

光電子運動量顕微鏡(PMM)は、従来の光電子分光法の弱点であった試料不均一性や微小結晶への適合問題を克服し、高感度計測により損傷し易い分子や変性しやすい分子へ適応が可能で、さらに高効率な多次元・多変数測定へと検出機能を飛躍的に向上させている。未だ実現していない数多くの分子固体の電子構造研究に幅広く展開が可能で、かつてない精度の電子状態計測による物性評価が可能となる。PMMの顕微・イメージング機能を生かした実・逆空間の領域選択により階層形状ユニットを分離計測し、機能発現に密接な価電子の軌道とスピンを単一手法で俯瞰計測(エネルギー、運動量、軌道、スピン)することに最大の特徴をもつ。波動関数の再構築を実現する光電子トモグラフィー画像は分子の新奇な構造学的知見を与えるだろう。

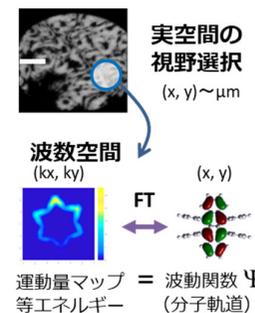


図3 PMMによる階層分離計測

この研究によって何をどこまで明らかにしようとしているのか

● STEP1: 光電子の3D運動量イメージは何を観測しているのか？

光電子の二次元運動量マップは波動関数の再構築を実現し、広域波数空間の解析で群論に基づいたパターン認識的な分子軌道分布が得られ、高分解能トモグラフィーでは、振電結合による軌道分布の歪みとして準粒子波動関数としての新奇な構造学的知見を与えると考えている。狭域波数空間ではブロッホ波の特徴をフーリエ変換した周期性の知見が得られ、階層を異にした対称性の議論は興味深い。PMM計測によって「分子の形」は可知化され、異方的な準粒子波動関数の広がり基準とする歪構造を元に再定義される。結合する振動モードに依存して分子の姿は変貌し分子機能を特徴づける形を与える。

● STEP2: 電子相関と電子フォノン相互作用の協奏を理解し、多体問題を制御できるか？

電子遍歴性を示す良質な有機結晶試料(単結晶や自己組織化超薄膜)を作製する。光電子トモグラフィーから波動関数計測を行い、PMM法の技術的なノウハウ取得と解析法の確立による先端計測環境の整備を目指す。熱電/光電変換や電荷/熱の輸送過程は階層的な各振動(分子内振動、分子間振動、非コヒーレントな揺らぎ)の効果により刻々と変化している。どう選別して検出するかが積年の課題で、PMMによる多変数・多次元の俯瞰計測による電子状態イメージが階層性を明示し、抜本的かつ全面的に解決する。振電協奏系を扱える理論である時間依存波束拡散法を駆使することで、分子固体の時空間変動を示す諸機能を理解する方法論を提供する。

● STEP3: どう分子の形を表現すれば現象を理解できるか？

振電協奏系の「形」の可知化は、高性能デバイスの設計指針のみならず、スピン液体や電荷秩序相などの未開な機能探索へむけた、分子構造と電子構造が融合した新しい構造学の確立へ誘う。無機物の単なる代替ではない、分子ならではの特徴を使う技術として分子オービトロニクスの時代を目指す。階層形状計測で拓かれる量子概念を元に準粒子エンジニアリングが進めば、新たな価値や市場の創出に繋げる道筋が拓かれるであろう。

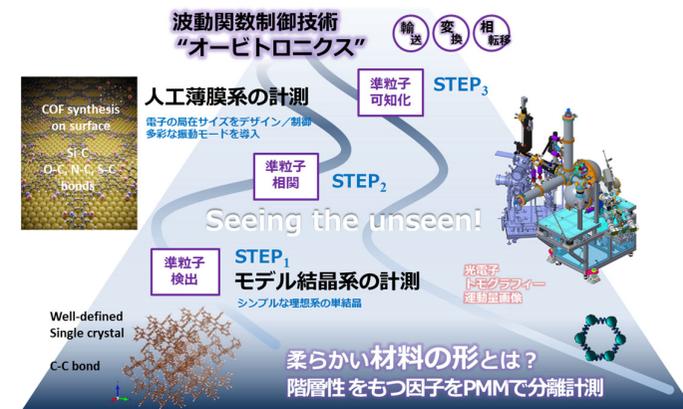


図4 研究計画の3段階ステップ