

研究題目：強相関電子系の相境界近傍におけるドメイン励起

研究代表者

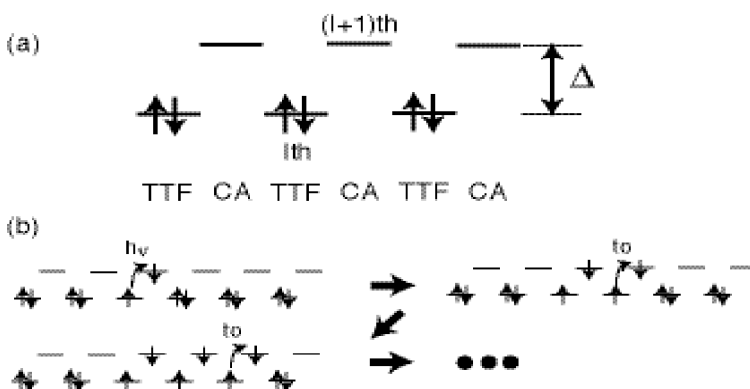
物構研 岩野薫

2006年度は新しいスパコン導入1年目という事で、前半がテスト期間、後半が本運用ということであった。従って正規の課題申請に基づく研究報告は後半のみが対象となるが、筆者は前半後半を通して一貫したテーマで研究を行ったので、その事にこだわらず、年度を通した研究の報告をここでまとめてみた。

1. Motivation

近年、相転移境界近傍に位置し、その結果外部刺激に対し大きな応答を与える系が興味を集めている。もちろんこれは応用上の可能性にもつながるが、平衡状態から遠く離れた非平衡ダイナミックスの問題として基礎的な研究意義を有するとともに、そのような動力学特性が物質自体の理解にフィードバックされ新しい物質開発の可能性を開くという期待もある。

このような基本的なスタンスの元に筆者は可視光程度のエネルギーの光照射により物質の状態を巨視的に変える、いわゆる光誘起相転移の研究に取り組んでいる。可視光程度のエネルギーであるので、当然1eVのオーダー、つまりこれは通常の熱転移では到達できない領域であり、そこには基底状態付近とは全く異なった新しい素励起がある可能性があり、ひいてはそれが光誘起相転移(=異種相ドメイン形成)とどう関係するか、そういう視点を持って研究している。



本計画では、その中でも特に有機分子性結晶であるTTF-CAという物質について研究を行った。この系では一次元的にTTFとCAという2種類の有機分子が交互に並んでいるが、その一つの相は両者ともがほとんど中性の中性相であり、もう一方はTTFからCAへ電子が一個ずつ移動したイオン相である。(上図参照)。元々の分子が中性であることを前提とすると、前者はごく普通であり、後者が電子の遍歴性の結果生じた相という言い方

も出来るが、この間の相転移は秩序・無秩序転移ではなく、1次転移であることがこの場合重要である。なお、格子変位の問題もあるが、本研究で扱うことの主要な部分はこれを無視しても理解できる。すなわち、純粋に電子的な相転移であり、かつ、絶対零度で起きうるいわゆる量子相転移である。

このような系の中性相に光を当てるとどうなるであろうか？ この場合の光励起は電子を隣の分子に移動させる励起、すなわち電荷移動遷移であるので、ある意味、イオン性相のseedを作ったことになる。そしてさらに本系は擬1次元系であるので、前頁の図に示すようにこのseedは相間のエネルギー差が十分小さければドメインとして相当大きく成長することが予想でき、その事を光学的電気伝導度（交流電気伝導度）のスペクトルを通して理論的に確かめる。また、その様なドメインは大きさの他に重心の位置という自由度も有している。従って、有限の重心運動量に対応したエネルギー分散も生じたドメインの運動という観点から興味深く、また、放射光によるその様なドメインの観測という可能性もあるので、それも研究の第2目標として扱う。

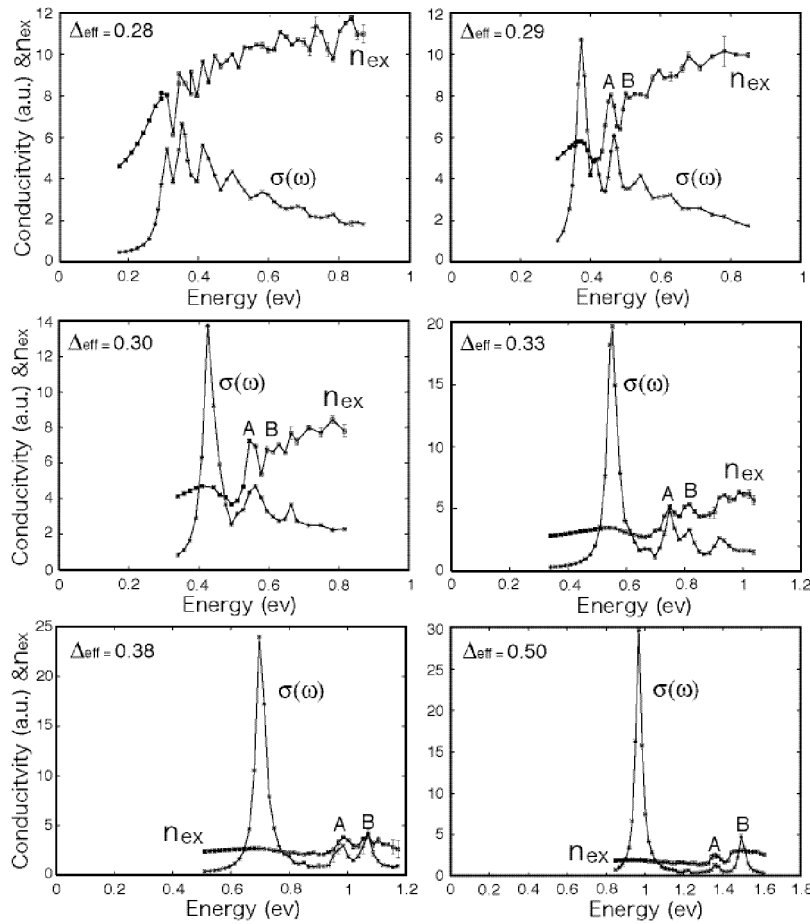
2. モデルおよび手法

今回の問題では多体問題的側面を出来るだけ厳密に扱いたいので、出来るだけシンプルなモデル（交代ポテンシャルを有する1次元拡張ハバードモデル）を用いる。ここで、各サイトの状態は一個おきにTTFのHOMO(Highest Occupied Molecular Orbital) およびCAのLUMO(Lowest Unoccupied Molecular Orbital) である。これを出来るだけ厳密に解くために、動的密度行列繰り込み群法(DDMRG法) を用い、各種スペクトルを求めることにする。

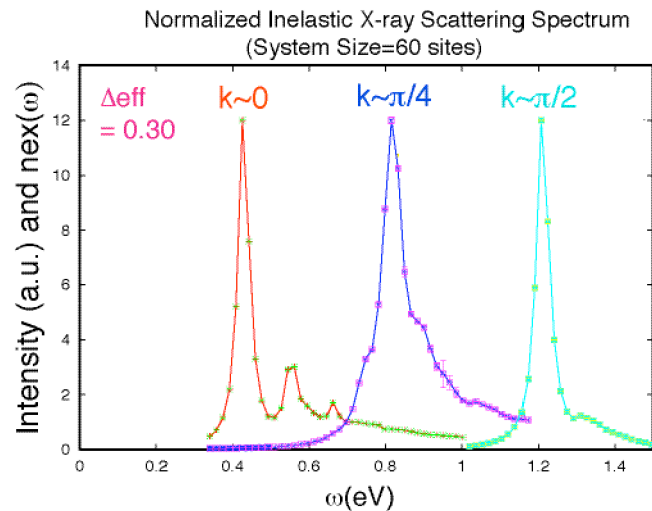
3. 主要な結果

まず、最初に光学電気伝導度の計算結果を次ページ冒頭に示す。

ここで、 Δ_{eff} が前述のTTFとCAの軌道エネルギー差で、中性相中においてどのくらいイオン性相との相境界（ $\Delta_{\text{eff}}=0.27$ ）に近い、を意味しており、上記の計算における唯一のフリーパラメータである。図に明瞭に示されるとおり、相境界に近づくにつれてスペクトルが大きく形状を変える。これは中性相中にイオン性相のドメインが直接光励起されたと解釈され、その一つの証拠は図に一緒に示した各エネルギー位置での電子励起数 n_{ex} である。すなわち、前図に示したとおり、中性相中のイオン性相ドメインは元の中性相を基準とすると多電子励起に他ならず、図にあるような非常に大きな電子励起数は上記の解釈を裏付けている。（ちなみに通常の絶縁体では1光子の電子励起数は1。）計算の詳細については末尾の文献(PRL)を参考にしたいが、実際、現実のTTF-CAの光学伝導度スペクトル測定結果を眺めてみると、通常では考えられないほどスペクトルが高エネルギー側に裾を引いており、それが今回の計算結果と対応していると推定される。実験のスペクトル自体は90年代頃から知られていたがこのような解釈と具体的なスペクトル形状の計算は初めてで、そこが本研究の最もオリジナルな研究成果である。



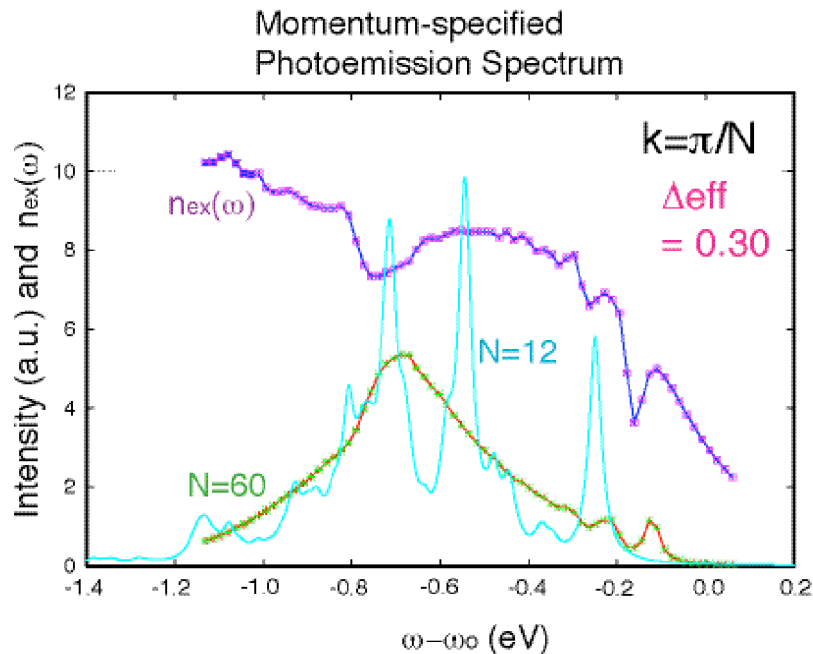
次に、非弾性X線散乱スペクトルと光電子分光スペクトルを示す。両者ともにエネルギーに加え、運動量の関数である。まず、下図に非弾性X線散乱スペクトルを示す。



この図において、 $k=0$ は光学電気伝導度とほぼ同等で、前述のようなドメイン励起に伴う高エネルギー側の構造が確認できる。これらのドメイン励起の状態は k が大きくなると間隔が狭まるのでその結果途中の $k=\pi/4$ では1時的に全体の幅が広がったに見えるが、一方で有限波数の効果は上記のドメイン励起を抑制することが実効モデル（2自由度だけの

ドメインモデル) から分かり、実際、 $k=\pi/2$ では単一のピークに近い形状となっている。

最後に光電子スペクトル(PES)を示す。



ここでは一例として波数が0に最も近いものだけを示しているが、光学的伝導度の場合と同じように大きな電子励起が観測され、しかもPESは非相互作用モデルなら先鋭な単一ピーク（コヒーレントピーク）になるところが大きなインコヒーレントピークが支配的である。実は運動量依存性も含めたこれらのスペクトルの振る舞いは上記の単純なドメインモデルでは理解不能で、それを解析的に理解すべく、新たな実効モデルの構築に今現在取り組んでいる。

4. 今後の展望

まだ細かいところで説明すべき点は残っているが、少なくとも1次元系に関しては筆者の主張するドメイン励起の概念はほぼ立証できたと思う。次なる自然な疑問としてはやはり次元があがった場合、特に2次元系の場合はどうか、ということになる。2次元系ではドメイン壁がドメインのサイズ（長さ）に比例するのでドメインが1光子では拡がりにくいという考えも当然あるが、一方で実験を見ると、2次元系と見なされる別の有機分子性結晶で1光子による大きなドメイン形成が観測されている。このような現象を説明すべく、今後も継続して研究を進める予定である。

5. 論文リスト

○K. Iwano, Phys. Rev. B 74, 125104 (2006).

"Spectral variety in a one-dimensional strongly correlated electron system:
Role of electron-lattice interaction"

○K. Iwano, Phys. Rev. Lett. 97, 226404 (2006).

"Direct Photoexcitation of Apparent Size of Domains without Lattice Motion
in Neutral-Ionic Transition Systems"

○K. Iwano, in preparation,

"Electric-Potential Bias in an EDO-TTF Tetramer as a Major Mechanism
of Charge Ordering Observed in Its PF6 Salt"

6. 参考論文（研究のメイン計算機ではなかったが、部分的にスパコンを利用）

○K. Iwano and Y. Shimoi, J. Phys. Soc. Jpn. Lett., in press,

"Density Functional Theory of Chlorine-Bridged Platinum Complexes:
Monomer, Chain, and Two-Leg Ladders"