

1. 研究組織（1名）

研究代表者：岩野薫

2. この6年間の研究と成果の総説

2.1 光誘起相転移のミニマムモデル・非断熱効果

光誘起相転移とは、文字通り光（主として可視光だがX線なども有り得る）によって物質の相を巨視的に変化させることである。物性物理では従来平衡状態の相を主として探求し、熱転移における関わる相の性質や相転移の特徴を詳しく議論してきたが、近年、光による物質の「転生」が新しい観点として話題になっている。

本研究では、まずその特徴の主たる2つを再現するミニマムモデルは何かと考えることを考えた。主たる2つの特徴とは、まず第1が光強度の関数としての相転移効率に見られる「非線形性」であり、第2が相転移の過程に観測される「巨視的振動現象」（コヒーレントフォノン）である。この他にも例えば光の波長依存性などいろいろ考えられるが、研究の始まったばかりのこの時期において最も重要なことは何か？を考え上記2つを特に取り出した。その結果として（論文番号3&8）、2本鎖梯子の電子格子相互作用（電荷密度波）モデルを用い、2重に縮退した基底状態間における光誘起相変化をシミュレートし、2つの特徴を再現することに成功した。ちなみに、このモデルは当時はあくまで理論的なものであり、いわば思考実験だったが、実はごく最近そのような系が実際の物質で本当に出来た。そのような意味で決して理論モデルに止まらず現実との真正面からの比較などよりチャレンジングな余地が出てきた。

次に、光誘起相転移と大きく関係する非断熱性の問題を考察した。（論文番号1）この場合、通常の系においても存在する自己束縛励起子（STE）の寿命を格子を量子的に扱って求めた。特に重要なのは系の非縮退性パラメーターと寿命との関係であり、前者がより小さくなる、すなわち、ドメイン（ソリトン・反ソリトン対）形成がしやすくなるに連れてSTEの寿命が短くなるということを実際に示すことが出来た。

2.2 光誘起電荷密度波ーモット絶縁体相転移の特徴

前節の研究は、ある意味純理論的なものであった。特に、構造相転移を念頭に電子格子相互作用のみを扱い、電子間クーロン相互作用の効果を無視した。筆者のイメージでは、多くの系において後者の効果は電子格子相互作用系のパラメーターに繰り込み可能で、その場合は本質的な役割を果たしていない。一方、いわゆる強相関電子系においては後者が勿論本質的な役割を果たしている。これらの系は高温超伝導を実現する銅酸化物系が代表的だが、マンガン酸化物系や分子集合体系などそれ以外の系においても盛んに研究されている。筆者はここではその中の一つである擬1次元ハロゲン架橋パラジウム錯体を具体的な

ターゲットとし、その可能な限り現実的なモデルを構築し、その上で標記のような電荷密度波状態からモット絶縁体状態への光誘起相転移の可能性を議論した。この系が強相関電子系であるというのは、まさに後者の相が端的に示しており、すなわち、同じサイト（パラジウムイオンの最外殻 4 d_{z²}軌道）内の強い電子間斥力によって各サイトに一個ずつ電子が並ぶというモット絶縁体である。一方、前者は前節でも言及した主として電子格子相互作用に起因する相であり、その基底状態で実現しているのはこの相である。重要なのは、この系においては両相がエネルギー的に接近しており、モット絶縁体相が電荷密度波の準安定相として存在するということである。このことはそれまでの理論的・実験的研究から分かった来たことである。（論文番号 4 & 11）そこで、理論的にどのような格子の変化を伴いながらドメインが成長しうるかを格子を断熱的に、電子系を密度行列繰り込み群法（DMRG法）を用いて扱い、その結果エネルギー障壁無しにドメインが成長する、すなわち、線形な過程であることが分かった。（論文番号 5）実際、このような光誘起相転移は最近本当に検出されており、またその特徴は理論と符合する。ちなみに熱的にはこの系において相転移は報告されていない。従って、ある意味、熱的には通常アクセス不可能な隠された状態を光によって新しく創り出したといえる。また、この場合のドメイン壁には分数電荷 (1/2e) が予想され、そのような新奇な素励起という観点からも興味深い。

2.3 1次元強相関電子系におけるスペクトル形状

次項に記載。

3. 当該年度の実施報告の詳細

ここでは前出の2.3「1次元強相関電子系におけるスペクトル形状」について報告する。

既に多少述べたとおり、近年の物性物理においてはいわゆる強相関電子系がホットな話題である。特に最近はそのような系における電子格子相互作用への興味が復活している。高温超伝導が発見されてしばらくは超伝導メカニズムとして電子間斥力が多くに関心を集めた。それ自体は今日でも変わっていないようであるが、しかし一方ではLanzara等による角度分解光電子スペクトルにおける電子格子相互作用由来と思われるキック構造やアイソトープ効果など電子格子相互作用の役割と強く示唆する知見が蓄積されつつある。

本研究ではやや違った観点からの研究を行った。筆者はむしろ1次元系というより単純な系に注目し、そこでの電子格子相互作用の役割を光学伝導度（吸収スペクトル）を通して解析することにした。その動機（理由）は以下の2点に集約される。まず第1にターゲット物質を典型的な1次元モット絶縁体である擬1次元ハロゲン架橋Ni錯体にするのであるが、この系においては光学伝導度の詳細な測定結果がある。また、この系においては筆者等によるそれまでの研究（実験家と共著の論文。番号9）でいわゆるラマンストークスシフトが非常に小さく、それ自体には電子格子相互作用が実効的に効いていないことが分かっている。光学スペクトルはある意味より基礎的な物理量なのでそのことがどう反映されるかに興味がある。

第2は手法的なことで、現在のところ、電子相関を正確に扱いつつ光学スペクトルを十分大きな系で計算する方法は動的密度行列繰り込み群（DDMRG）法しかない。特に電子格子相互作用まで同時に取り込んで計算するためにはよほどの正確さが要求される。一方で、この方法は1次元（単1鎖および梯子系など）に限られる。手法的な適用範囲と物理的興味の重なる例として本テーマを選んだ。

次に主要な結果を示す。まず始めに、モデルハミルトニアンは以下のものである。

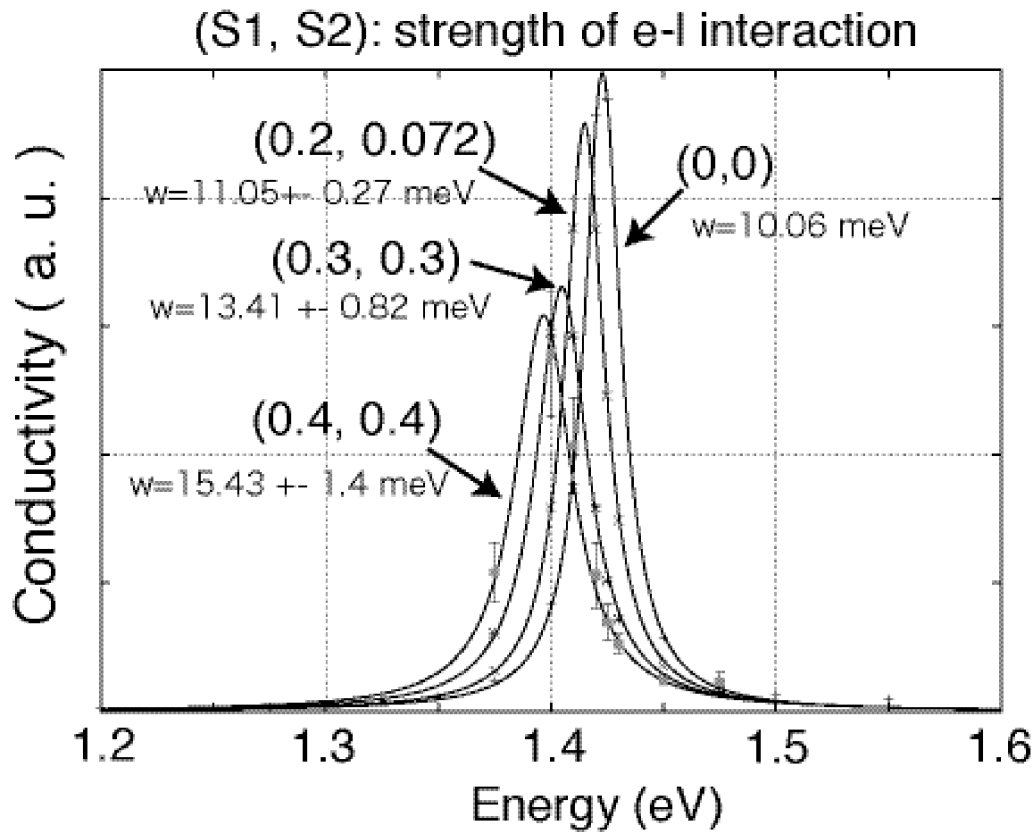
$$\begin{aligned}
 H = & - \sum_{l\sigma} t(l)(C_{l+1\sigma}^\dagger C_{l\sigma} + h.c.) + \sum_l e(l)n_l + \sum_{l=odd} U_p n_{l\uparrow} n_{l\downarrow} \\
 & + \sum_{l=even} U_d n_{l\uparrow} n_{l\downarrow} + \sum_l V(l)n_l n_{l+1} + \sum_{l=odd} V_{pp} n_l n_{l+2} \\
 & + \sum_{l=even} V_{dd} n_l n_{l+2} + \sum_l \frac{K_l}{2} Q_l^2, \quad (1)
 \end{aligned}$$

ここで、 $C_{l\sigma}$ などは電子の演算子であり、1次元的に交互に並んだNi 3d_{z²}軌道およびハロゲンの最外殻p軌道に対応する。 $Q(l)$ はハロゲンの鎖方向変位であり、電子のサイトエネルギー($e(l)$)、最近接サイト間クーロン斥力($V(l)$)、最近接トランスファー($t(l)$)がこれに $e(l)=e_d-\alpha(Q(l+1)-Q(l-1))$ （例えばNiサイト）、 $V(l)=V_o-\alpha(Q(l+1)-Q(l))$ 、 $t(l)=t_o-\beta(Q(l+1)-Q(l))$ のように依存する。一方、 U_p や U_d はサイト内のクーロン斥力を表しており、これらは当然格子変位には依存せず、強相関係であることを反映して特に後者のエネルギーは他のパラメータよりもずっと大きい。

このようなモデルを用い、サイト数36、ホール数18（ホール描像）を設定し、ハロゲンが臭素の場合の光学スペクトルの結果を図1にまとめた。ここで、ハミルトニアン(1)の各パラメータは測定スペクトルのピークエネルギー、帯磁率測定から求められた最近接間スピンの交換エネルギー、またNQR（核4重極共鳴）測定から求められた臭素上のホール密度などを再現するように求められている。また、格子配置はその零点振動程度の揺らぎ幅を各々のサイトでガウシアンによって与え、各格子配置のスペクトルをサンプル平均してある。さらに、図中のS1(S2)はエネルギーの次元に変換した電子格子相互作用の強さを表し、それぞれ α (β) の2乗に比例してサイトに対角的（非対角的）な項に対応する。

図1の各スペクトルはこの系における最低光学吸収バンドに対応し、事実上このあたりのエネルギーを支配している。計算は計算時間の都合上、各点の示す限られたエネルギーにおいてのみ行っている。実線の曲線はそれを最小2乗法によってフィッティングしたものである。図中の(S1, S2)=(0,0)は電子格子相互作用が完全にゼロの場合に相当する。実際の計算においては有限な虚部（ここでは0.01 eV）をレゾルベントに与えて行うので、あらかじめ半値半幅(w)として10 meVが付いている。従って、この場合の $w=10.06$ meVは計算の精度を考えると事実上線スペクトルと言える。(S1, S2)が有限の場合の各スペク

トルから以下のような結果がまとめられる。（なお、これらの値は全て基底状態をモット絶縁体とする範囲内のものであることに注意。）



A. (S1, S2)=(0.2, 0.072)という電子格子相互作用の組み合わせは前出のパラジウム錯体に対して決められたものである。後者の系においては主としてオンサイトのクーロン斥力が小さいため基底状態は電荷密度波状態になっているが、その結晶構造が結晶定数も含めてほぼ同じであるため、電子格子相互作用もほぼ同じであると考えられる。図にもあるとおり、その幅 w は約 11 meV、すなわち、電子格子相互作用による実質的な全幅は約 2 meV と見積もられる。これは実験において観測される全幅 7 meV と矛盾しない値である。なお、この実験のスペクトル幅はこの種のものとしては異常に小さい。既に触れたとおり、その主たる原因はこの系における電子格子相互作用の大きな抑制と見なされ、モット絶縁体であるが故の特性である。（詳しくは論文 6, 9, 10 を参照のこと。）

B. (S1, S2) が有限の場合、電子格子相互作用による実質的な全幅は図中にあるものでは最大 11 meV、図には示していないが (S1, S2)=(0.8, 0.2) で 13 meV 程度にまで増大する。絶対値こそは小さいが電子格子相互作用依存性はかなりあると言える。実際、塩素架橋系の全幅は 70 meV と測定されており、より大きな電子格子相互作用と塩素架橋系のより大きな零点振動を考慮すると臭素架橋系よりずっと大きな全幅は定性的に理解できる。

C. 以上の結果と対照なのが既に何回か触れたパラジウム系（電荷密度波系）のスペ

クトル形状である。実際、そのメインピークの幅は0.3 eV 程度あり、最大で2桁程度の違いがある。計算によってそのような幅を再現することにも成功し、またそれらの違いを定性的に説明することも出来た。

D. 最後に実際の物質から少し離れるが、電子格子相互作用のタイプによる違いについて少し述べる。ハミルトニアン (1) とそのパラメターのハロゲン変位 ($Q(I)$) 依存性によって示される通りこれまでの現実的なモデルでは格子変位の電子系への影響は格子変位の長波長成分に対して消えるようになっており、これが重要なことである。もちろんこれだけでは電荷密度波状態においてそうであるように電子格子相互作用は抑制されず、この事に加えモット絶縁体になり素励起の性質が定性的に変わることが本質的であるが、一方で、電子格子相互作用のタイプが変わると抑制あり方も変わるという予想が当然なされる。そこで本研究においてもポテンシャル自体の揺らぎ幅を一定にしつつタイプをいわゆるHolstein型にしてスペクトル幅の比較を行った。ここで、Holstein型というのは各格子変位が1サイトにのみ影響するモデルで、当然長波長極限でも寄与は消えない。結果としては6倍以上の幅の増大が見られ、この場合は電子格子相互作用が抑制されないという予想通りの結果を得た。

【結び】以上をさらにまとめると、まず、強相関電子系においてはその素励起が通常の絶縁体と大きく異なるため電子格子相互作用の受け方も大きく異なる。さらにそこでは電子格子相互作用のタイプも通常では予想されないほど敏感に影響する。このようなことは広く行われているRPA近似では記述することが出来ない。勿論、本計算の手法、DDMRG法は1次元系に限られているが、見出した上記の結果は決して1次元系に限った訳ではないと予想され、本研究の意義は強相関電子系、あるいはもっと広く多体問題としてのスペクトル問題の多様性を実証したという点にもあると強調したい。

なお、本研究は論文を現在執筆中です。さらに以上のことに密接に関係して同じ系のポーラロン問題についても本機構スパコンを利用して研究致しました。それについては論文6にまとめられています。

4. 論文リストなど

【査読付き論文】

1. K. Iwano: Phys. Rev. B., 64 (2001) 184303.
"Large Contributions of Long-Wave Phonon Modes to
Non-Radiative Transitions from a Bound Soliton-Antisoliton Pair to
the Ground State in One-Dimensional Charge-Density-Wave Models"
2. K. Iwano: Phys. Rev. B., 65 (2002) 024302.
"Precursor of photoinduced structural phase transitions in a

coupled-chain system with an electron-lattice interaction"

3. 岩野薫：「放射光」（日本放射光学会誌）16 (2003) 33-38.
「光誘起構造相転移における非線形性と巨視的振動現象」
4. K. Iwano: Phys. Rev. B 69 (2004) 045104-(1-5)
"Hidden Pd Mott-insulator states in quasi-one-dimensional Br-bridged Pd/Ni mixed-metal complexes"
5. K. Iwano: Phys. Rev. B, 70 (2004) 241102R-(1-4)
"Theory for photoinduced phase transition from a charge-density-wave state to a Mott-Hubbard insulator in a quasi-one-dimensional Br-bridged Pd compounds"
6. K. Iwano, Phys. Rev. B, 73 (2006) 035108-(1-11).
"Localization and delocalization of carriers in quasi-one-dimensional halogen-bridged Ni compounds - a hindrance to transitions to metal in a Mott-insulator chain"

【国際会議プロシーディング論文】

7. K. Iwano: J. Phys. : Conference Series, 21 (2005) 38-43.
"Photoinducing a Mott Insulator in a Charge-Density-Wave System"

【参考論文】（実際は本機構スパコンを利用したが、その事が明記されていないもの。総説をより理解して頂くために付記します。）

8. K. Iwano: Phys. Rev. B 66 (2002) 060302-05R.
"Nonlinearity and Macroscopic Oscillations in Photoinduced Structural Phase Transitions"
9. K. Iwano, M. Ono, and H. Okamoto: Phys. Rev. B 66 (2002) 235103-07.
"Strong Effective Suppression of Electron-Lattice Interaction in the Photoexcited States of Halogen-bridged Ni Complexes as one-Dimensional Mott Insulators"
10. R. Shirasaki and K. Iwano: J. Phys. Soc. Jpn. 72 (2003) 2902-2907.
"Delocalization of Polaron of the Excited Peierls-Hubbard System in the Mott Phase"

11. H. Matsuzaki, K. Iwano, T. Aizawa, M. Ono, H. Kishida, M. Yamashita, and H. Okamoto: Phys. Rev. B, 70 (2004) 035204-(1-6).
"Tuning the electronic structure from charge-transfer insulator to Mott- Hubbard and Peierls insulators in one-dimensional halogen-bridged mixed metal complexes"

【口頭研究発表】

- 岩野薫、「梯子型電荷密度波モデルにおける光誘起相転移の非線形性と巨視的振動現象 II」、物理学会・2001年秋季大会、平成13年9月19日
- 岩野薫、「Pd/Ni 混晶型MX-Chainのラマン散乱」、物理学会・2001年秋季大会、平成13年9月20日
- 岩野薫、白崎良演、「1次元ハロゲン架橋Ni錯体における発光ストークスシフトの抑制」、物理学会・第57回年次大会、平成14年3月24日
- 岩野薫、「DMRG法によるPd/Ni混晶型MX-ChainのCDW・モット絶縁体転移の研究」、物理学会・2002年秋季大会、平成14年9月8日
- 岩野薫、「1次元強相関系における格子緩和」、物理学会・第58回年次大会、平成15年3月29日
- 岩野薫、「Ni/Pd 混晶型MX-Chainにおける大きな電子相関効果とキャリア誘起効果」、物理学会・2003年秋季大会、平成15年9月23日
- 岩野薫、「擬1次元ハロゲン架橋Ni 錯体におけるポーラロンの局在・非局在 —dpモデルの摂動論」、物理学会・2003年秋季大会、平成15年9月23日
- 岩野薫、「擬1次元系における光誘起電荷密度波—モット絶縁体転移 —Pd(chxn)2Br3の場合」、2004年放射光学会、平成16年1月10日
- 岩野薫、「擬1次元ハロゲン架橋Pd錯体におけるCDW中のモット絶縁体ドメイン形成」、物理学会・第59回年次大会、平成16年3月28日
- 岩野薫、「擬1次元ハロゲン架橋Pt-Pd錯体における低エネルギー集団的励起子状態の可能性」、物理学会・2004年秋季大会、平成16年9月14日
- 岩野薫、「梯子型ハロゲン架橋白金錯体の光学スペクトル」
物理学会・第60回年次大会、平成17年3月27日

岩野薫、「擬 1 次元ハロゲン架橋 Ni 錯体における吸収スペクトル形状」
物理学会・2004 年秋季大会、平成 17 年 9 月 22 日

K. Iwano, 2005 年 5 月、第 2 回光誘起相転移国際会議、Rennes, France
"Photoinducing a Mott Insulator in a Charge-Density-Wave System"