

# 実施報告書

1. 研究組織 研究代表者：岩野薫（KEK・物質構造科学研究所・助教）

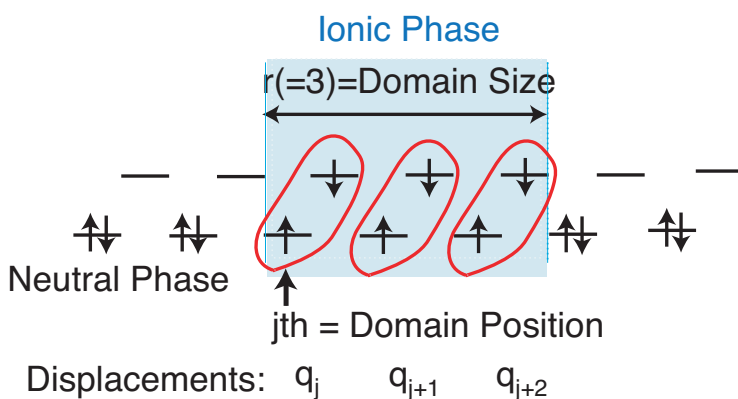
2. 研究課題「ドメイン形成ダイナミクスにおけるフォノン散乱効果」

### 3. 研究の背景、目的

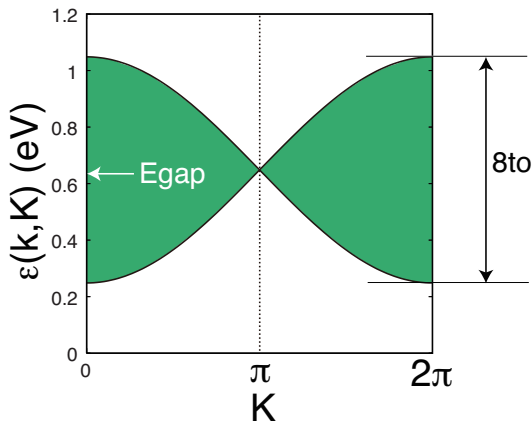
近年、物質の基底状態のみならず光励起状態にも新しい物性を探索する動きが高まっている。これは時間無限大まで安定な状態のみならず、有限時間ではあるがその時間内で相として意味を持つ状態にも目を向けることを意味し、従来の温度や圧力などの外部変数に加え、時間という変数を積極的に物性研究に導入していこうという機運である。

このような流れの中での理論研究として光励起後に新たに生成された異種相ドメインの成長過程を考えている。第1図にその一例の模式図を示すが、バックグラウンドは両側に示されるような中性相(Neutral Phase)であり、薄いブルーで塗られた部分が生成ドメインであり、この場合はイオン性相(Ionic Phase)に対応する。重要なことはこの場合のドメインというのは主に電子自由度からなっているということである。もちろん、電子配置が変わればそれに応じて周りの原子配置も変わり、十分長い時間スケールでは原子配置も考慮してドメイン構造を議論すべきだが、原子構造変化には時間がかかるのでまずそれを無視するとすると上述のように第0近似として電子自由度のみを考えることが許される。

このような電子ドメインは元々の拡張ハバードモデルなどの多体電子ハミルトニアンの一部の自由度しか取り入れていないのは事実だが、しかし、少なくとも（基底状態）相境界近傍ではその良い近似となっていることは参考文献1, 2において示されている。そこでそのことを前提として、基本的な自由度としてドメインの重心運動と空間広がり（サイズ）という2自由度のみを扱うことにする。第2図にその場合に得られるエネルギー分散を相境界直上において示す。K, k はそれぞれドメインの重心運動量と空間広がりに関する運動量である。もちろん、これらは2個の相境界壁（ドメイン壁）に伴う2つの運動量の和・差として定義されるものと思っても差し支えない。



第1図：光生成されたドメインの模式図。中性相中のイオン性相ドメインの場合。



第2図：電子ドメインのエネルギーバンド

ここで、 $t_0$  は元々のハミルトニアンに存在する電子の最近接サイト間の飛び移り積分であり、分子性結晶で0.2 eV程度、金属酸化物で1 eV程度であり、逆数にして時間スケールにするとフェムト秒程度と物性の動的スケールとしては超高速 (ultrafast) な領域に属する。なお、このような超高速現象というのは現在の光物性において非常にホットなテーマになっており、そのような意味でもこのような励起を実時間で捉えるということが今後の興味となってくると期待される。

以上のような第ゼロ近似としての電子ドメインで予想されるダイナミクスはどのようなものであろうか？ ここでは可視光励起の場合を考えるとすると、パルス励起後の直後に  $K=0$  の軸上にパルスの中心エネルギーの周りに分布した状態になるはずである。何故なら、可視光はこの図のスケールでは運動量としてほぼゼロであり、それをゼロと近似しても差し支えないからである。系が電子ドメインの自由度のみからなる場合はこの分布は時間発展しても変わらず、一方実空間では  $k$  に対応するドメインサイズの分布 (波束) がほぼ一定のスピードでドメイン成長の方向へ進行していく。(第3図の青色の線を参照のこと。) このスピードは、第2図の  $K=0$  のバンド幅すなわち、 $8t_0$  から決定される群速度に他ならない。また、この波束の幅はこの図の時間スケール、すなわち、数10フェムト秒では僅かにしか広がらず、ほぼコヒーレントな運動と見なせる。一方、重心運動は既に述べたように  $K=0$  のままなので、 $K=0$  に対応する平面波状態にそのままあり続ける。

それでは次の疑問としてこのようなコヒーレントな運動が他の自由度を取り入れたとき、どこまで維持されるか、を考える。上述の文章では、原子配置の変化は遅いとして無視したが、それは必ずしも全部そうではない。一部の原子配置の変化のモード (振動モード) ではその振動数が数千  $\text{cm}^{-1}$  と高く、これは0.1 eV以上のエネルギーであり、電子ドメインのエネルギースケールに匹敵する。従って、そのような一部の振動 (フォノン) は動力学に取り込んでその効果を考察することが必要と考えられ、それが本研究の目的である。

#### 4. 具体的な方法

まず、フォノンの入れ方であるが、以下にドメイン-フォノンモデルを示す。

Domain-phonon hamiltonian.

$$H = -t_0 \sum_{j,r} (C_{j,r+1}^\dagger C_{j,r} + C_{j-1,r+1}^\dagger C_{j,r} + H.c.) \\ + S(q_j + \dots + q_{j+r-1})n_{j,r} + \sum_j \left( \frac{1}{2\mu} p_j^2 + \frac{S}{2} q_j^2 \right),$$

where  $C_{j,r}$  and  $C_{j,r}^\dagger$  are the operators for a domain of which the left end and the spatial size are  $j$  and  $r$ , respectively,  $p_j$  and  $q_j$  are the antisymmetric modes for the intramolecular vibrations in the  $j$ th unit cell, and  $\omega_{ph} = \sqrt{S/\mu}$ .

ここで  $q_j$  が振動モードであり、その意味などは第1図を参考にされたい。注意点として、フォノンドメイン相互作用はドメインの内部でしか働かない。これは元々の電子格子相互作用を格子変位の取り方を調節して基底状態でゼロにしたからである。つまり、励起状態、すなわちドメイン内部でのみ格子緩和が働く方向に相互作用が働き、それが第2項の意味である。従って、フォノン励起はまずドメイン内部でのみ起こる。ただし、一旦出来たフォノンはドメイン外においても存在出来る。

時間発展は時間依存シュレディンガー方程式を直接解くことにより追跡する。より具体的には、時間発展演算子を時間間隔をメッシュに切って各メッシュ内でテーラー展開する。光パルス励起の効果自体は1次の摂動論で扱う。この部分は時間積分を含むが、それは先に積分してしまい、その結果としてレゾルベントとの積になる。従って、時間発展の計算に先立ち1回大次元の連立方程式を解く必要があるが、これは共役勾配法(CG法)によって計算する。なお、数値的にレゾルベントを扱うためには微少だが有限の虚部が必要で、これは階段関数型のパルスに微少の時間減衰因子が掛かることに相当する。

また、全運動量  $K_T$  は可視光励起の場合はゼロに保存されるので、その部分空間でのみ解くことにより計算負荷を減らす。具体的には以下のような状態ベクトルを用い、その係数  $\phi^{(K_T)}$  の時間発展を計算する。

$$|\Phi_{K_T}\rangle = \sqrt{\frac{1}{(N+1)}} \sum_{j=1}^{N+1} \sum_{p=1}^N e^{iK_T j} |jp\rangle \prod_l \left\{ |n_l \gg_{j+l} \right\} \phi^{(K_T)}(p, \{n_l\}),$$

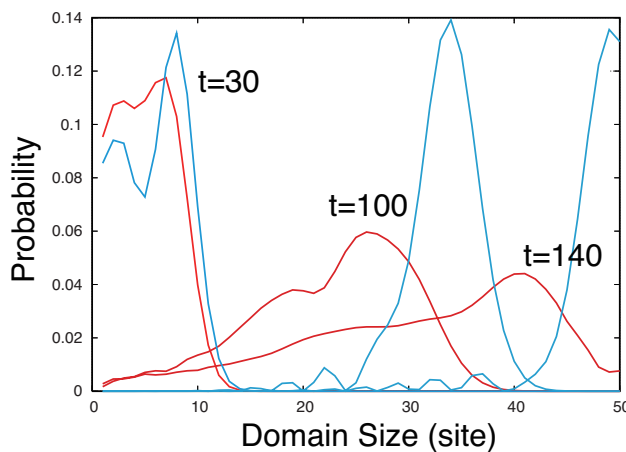
where  $|n_l \gg_{j+l}$  is the phonon number state at  $(j+l)$ -th unit cell.

## 5. 研究成果

まず、予想されるポイントについて述べる。以上のようなフォノンを導入後のドメイン成長に対して可能性のある効果は少なくとも以下の3つである。

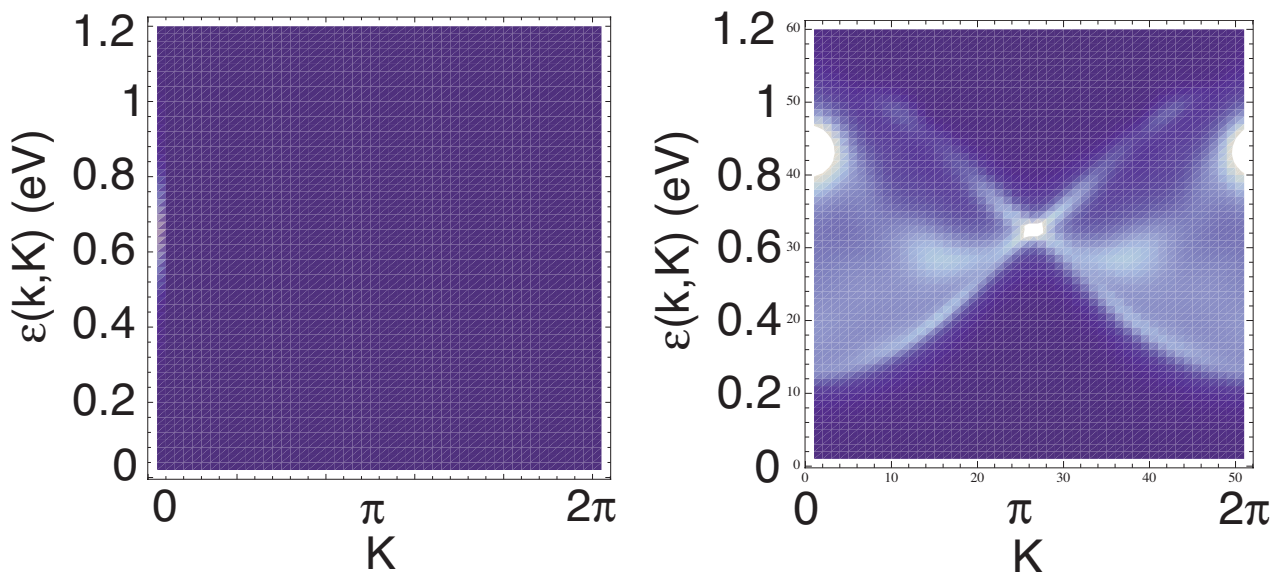
- ①ドメイン運動エネルギーのフォノンへの散逸による減速。
- ②ドメイン重心運動量が0からずれることによるエネルギーバンド幅減少の結果として生じる群速度の低下(減速)。
- ③ $\omega$ 無限大極限において予想されるドメインサイズに比例したエネルギー利得に伴う加速または減速効果。(初期エネルギー分布=光励起エネルギーに依る。)

これらを念頭に置いた上で数値的シミュレーションを行った。今回の最大フォノン数は5に限定し、空間サイズは50サイトである。用いた計算機はシステムAのみであり、1つのパラメータセットに基づくこの範囲の時間発展に10時間程度を要した。第3図にドメインサイズの時間依存プロファイルをフォノン励起の無い場合のそれと一緒に示す。



第3図：ドメインサイズの時間発展分布プロファイル。青色がフォノン数ゼロであり、赤が5個まで許した場合。時間の単位は、約0.66 フェムト秒。パルス励起の時間幅はこの単位で30であり、 $t_0=0.1$  eV,  $S=0.04$  eV、 $\omega_{ph}=0.2$  eV。

また、第4図に第2図に対応するdensity mapをやはりフォノン励起の無い場合と合わせて示す。



第4図：(左図) フォノンのない場合、(右図) フォノンのある場合。縦軸と横軸はそれぞれドメインエネルギーと重心運動量、 $K$ であり、第2図と対応するdensity mapである。左図はウエイトが $K=0$ の軸上のみで、このまま時間発展しない。右図は $t=140$  に得られたもの。

まず第3図の結果から、フォノンのない場合はコヒーレントに運動していた波束（青色）と比べてフォノンが励起する場合（赤色）は全体的に波束の運動が遅くなり、特に後ろに取り残される成分があることが明瞭に分かる。この残される部分はより詳細に時間発展を調べることにより、ほぼ時間依存性を失い、いわば停止してしまっただけに見える、これは巨視的現象である摩擦の効果の量子版という見方も出来る。

問題はこの現象の原因は何か？であり、考えられるのが先に挙げた3つのメカニズムであり、それをさらに詳しく考察するために第4図のようにドメインの自由度のみを取り出して解析した。なお、この解析においても第3図同様にフォノン自由度は積分して消去してある。第4図右において直ちに分かることは、フォノンの無い場合の左と対照的に $K=0$ 以外の状態に幅広く分布し、重心運動量に対する運動量デコヒーレンスが実質的に起こっていることである。さらには、状態数密度の高い $K=\pi$ やそれ以外の $K$ におけるバンド上端および下端にウェイトが見られ、このような部分においては群速度が極めて小さいため、その結果として取りそこされる部分が発生するという上記②のメカニズムが主因であると考えられる。ただし、①のメカニズムも完全には否定出来ない。③のメカニズムはこれも完全には否定出来ないが、フォノンエネルギーが電子トランスファー $t_0$ と同程度であり、また、その場合は波束はコヒーレント性を回復するはずなので、それほど働いていないと考えている。

## 6. まとめと今後の展望

今回は比較的短い期間ではあったが、現実の物質系に対応するパラメータ（第3図のキャプションの参照のこと）を用いて、フォノン散乱が波束の運動、すなわち、ドメイン成長に実質的な影響を与えることが分かった。今後の方向性としては、実験的に観測されているいわゆるコヒーレントフォノンとの関連性やエネルギードメインで見るとのスペクトロスコピーとしての振る舞いなどが興味深い。実験との関連性でさらに付け加えると、第3図は光誘起相転移系においてポンプ・プローブ分光で観測される時間依存反射率変化に対応している。つまり、第3図を空間平均すれば光誘起相転移効率となり、その時間発展が実験で観測されるものに対応している。一方、第4図は運動量依存性に関わるが、これを直接見る実験はまだ無い。放射光を用いた対応する実験を提案する必要があるとも感じている。

純理論的な側面ですらさらに付け加えると、このような非平衡動力学の素過程をきちんと定式化する重要性を感じている。今回は考えられるもっとも単純なモデルを用いてその第一歩に取り組んだが、元々の多体ハミルトニアンに戻った場合や、あるいは次元性が上がった場合など、まだまだ残された課題は多く、今後とも継続して取り組む予定である。

### 参考文献

- [1] K. Iwano, PRL 97, 226404 (2006).
- [2] K. Iwano, PRL 102, 106405 (2009).