

腰原 伸也

東京工業大学大学院理工学研究科・教授

光技術が先導する臨界的非平衡物質科学

§1. 研究実施の概要

本研究では、5 年 5 ヶ月の期間内に以下の 4 点を重点的に推進する。このために各々の項目の全体スケジュールに沿って本年度は以下の計画を実施した。計画は順調に進行中である。

- (1) **新光源開発と時間分解光電子顕微鏡への利用**: 時間分解型光電子顕微鏡に適したコンパクトなフェムト秒広波長域広繰り返し・広周波数可変光源、並びにナノスケール相転移ダイナミクス観測に不可欠な、時間分解光電子顕微鏡の設計を行い、主要部品の発注を完了した。このうち光源用の KGW レーザーについては本年度 10 月納入され、広帯域波長可変、繰り返し周波数可変光源の構築を開始した。
- (2) **新物質・構造物性開拓**: 時間分解光電子顕微鏡や動的 X 線観測技法を組み合わせ、物質開発指針の実証研究を行うために、そのデモンストレーション候補となる物質の探索を引き続き実施した。コバルト酸化物において、室温以上でも巨大かつ超高速の反射率変化を伴う新たな光誘起相転移系を発見し、理論家と協力してその起源の解析を開始した。
- (3) **理論**: 共鳴 X 線散乱などを用いた電子的ドメイン観測や、揺らぎ観測に関するデータを解析し、理論予測をする上で、その基盤となる基盤データ・ルーチンソフトの開発に理論グループが協力して着手した。
- (4) **フェムト秒動的 X 線測定技法**: 5 月にはローレンスバークレー研究所で Schoenlein 博士らと直接実験打ち合わせを行い、日本の ps 時間分解 x 線共同利用施設で行える準備実験の検討会を開催し来年度のビームタイムの申請も実施した。

§2. 研究実施体制

(1) 東工大 腰原グループ

- ① 研究分担グループ長: 腰原 伸也 (東京工業大学 理工学研究科 教授)
- ② 研究項目: 時間分解光電子顕微鏡並びにその光源開発と物質開拓
・光誘起ドメイン動的観測のための時間分解光電子顕微鏡 (PEEM) とそのための fs 秒レー

ザー光源開発

- ・新しい電子－格子強結合物質の開発と新物性機能の開拓

(2) 東北大 石原グループ

① 研究分担グループ長: 石原 純夫(東北大学・理学研究科・准教授)

② 研究項目: 非平衡共同現象における動的構造解析の理論構築

- ・ 共鳴 X 線散乱などを用いた電子スピン構造結合系のドメイン観測や、揺らぎ観測に関するデータ解析と新しい観測技法の提案・評価

(3) 分子研 米満グループ

① 研究分担グループ長: 米満 賢治 (分子科学研究所・理論・計算分子科学研究領域・准教授)

② 研究項目: 動的相転移過程の解析と理論構築

- ・ 光誘起相の超高速ダイナミクスの解析、特に量子的な電子・構造揺らぎ観測に関するプログラムの開発と評価

(4) LBNL Schoenlein グループ

① 研究分担グループ長: R.Schoenlein (ローレンス・バークレー国立研究所)

② 研究項目: fsX 線光源を用いた非平衡協働現象の観測

- ・ レーザースライシング技術を用いて放射光から発生させた fs 秒 X 線を用いた電子－格子強結合系の光応答の観測

§3. 研究実施内容

(文中の引用番号等は(4-1)に対応する)

- A) 新光源開発と時間分解光電子顕微鏡への利用:** 時間分解型光電子顕微鏡に適したコンパクトなフェムト秒広波長域広繰り返し・広周波数可変光源、並びにナノスケール相転移ダイナミクス観測に不可欠な、時間分解光電子顕微鏡の設計を行い、主要部品の発注を完了した。このうち光源用の KGW レーザー(1033nm)については本年10月納入され、1kHz 繰り返しで 1W 以上、100kHz 繰り返しでも 6W 以上の出力を得る事が出来た。これを光源として、広帯域波長可変 600nm-3100nm)、繰り返し周波数可変(1kHz-1MHz)光源の構築を開始した。このレーザー新光源の利用によって、新しい光誘起相転移系の探索の効率化を図る事が出来、実際項目 B における新物質発見へとつながった。また光電子顕微鏡も本年度2-3月初旬に納入され、周波数可変紫外 fs パルス光を実際に用いた光電子顕微鏡像の観測が始まった。
- B) 新物質・構造物性開拓:** 時間分解光電子顕微鏡や動的 X 線観測技法を組み合わせ、物質開発指針の実証研究を行うために、そのデモンストレーション候補となる物質の探索を引き続き実施した(B-1~3)。これによって、コバルト酸化物において、室温以上でも巨大かつ超高速の反射率変化を伴う新たな光誘起相転移系を発見し、理論家と協力してその起源の解析を開始した。さらに、梯子構造等特殊な低次元構造を持った、銅酸化物においても光誘起絶縁体化とも考えられる初めてのタイプの超高速光誘起光学特性変化を確認するに至った。また有機物においても、合成家(京大や餅教授のグループ)と協力して、構成分子の化学修飾による新たな電荷秩序型金属-絶縁体転移を示す物質系の発見にも成功した。
- C) 理論:** 共鳴 X 線散乱などを用いた電子的ドメイン観測や、揺らぎ観測に関するデータを解析し、理論予測をする上で、その基盤となる基盤データ・ルーチンソフトの開発に理論グループが協力して着手した。特に米満らのグループは、軌道秩序の揺らぎが、電子秩序の相転移に発展するダイナミクスの計算を開始した。本年度は1次元2軌道ハバード模型の軌道自由度に由来する光誘起超高速コヒーレント振動を調べ、数値的に厳密な多電子波動関数に対する時間依存シュレディンガー方程式を解いて、時間に依存する光学応答関数を得た。計算されたスペクトルはプローブ光の周波数によって異なる周期をもつ特徴的なコヒーレント振動を示し、振動の主成分に対する解析により、これらの振動は光生成された状態の量子干渉によって起こることが分かった。電荷移動励起付近をプローブしたときに現れるゆっくりした振動は、ラマン活性な軌道励起であるオービトンに帰属する。電荷移動励起よりずっと低いエネルギーをプローブすると、二重占有サイトと空サイトの対励起による速い振動がみえることも明らかとなった(C-1~9)。また石原らは、スピン自由度のある強相関電子系における光誘起現象の理論計算を行った。特に実験で観測されたコバルト酸化物の光誘起相転移の機構解明に着手し、遍歴型強相関電子系における光誘起スピン転移現象の可能性とその微視的機構について解析を行った。大規模数値計算による理論モデルの解析により、低スピ

ン状態に光を照射することで高スピン状態が生じること、これが光誘起キャリアーと磁気ポーラロン状態に類似した束縛状態を形成することを明らかにした。この束縛状態がポンプ・プローブスペクトルに特徴的なピーク構造を形成すること、これが温度上昇によるスピンに転移によるスペクトルと定性的に異なることを示した。またマンガン酸化物における光誘起相転移現象の解析を、拡張された二重交換相互作用モデルの数値計算を通して行った。特にポンプ光強度の違いによる光励起状態の特徴に焦点を当て、ポンプ光の強弱によりスピン自由度と電荷自由度のダイナミクスに違いが生じることを明らかにした。これらの研究を通して、スピン自由度のある強相関電子系における隠れた秩序状態の実現可能性についての知見を得た(論文 C-10~14)。

- D) フェムト秒動的 X 線測定技法:** ローレンスバークレー研究所を、沖本、福本、星野が訪問し、ワークショップに参加するとともに Schoenlein 博士らと直接実験打ち合わせを行い、日本の ps 時間分解 x 線共同利用施設で行える準備実験の検討会を開催した。また fsX 線実験の準備をかねて、この2年間蓄積して来た Mn 酸化物に関する動的 X 線データ(東大宮野教授のグループとの共同研究)のまとめと光学的実験の補足を行い論文にまとめあげた出版した(論文 D-1)。

§4. 成果発表等

(4-1) 原著論文発表

● 論文詳細情報

- B-1: K.Onda, M.Shimizu, F.Sakaguchi, S.Ogihara, T.Ishikawa, Y.Okimoto, S.Koshihara, X.F.Shao, Y.Nakano, H.Yamochi and G.Saito, “Ultrafast and large reflectivity change by ultraviolet excitation of the metallic phase in the organic conductor (EDO-TTF)2PF6”, *Physica B*, 405, pp.S350-S352, 2010. (DOI: 10.1016/j.physb.2009.11.054)
- B-2: X.F.Shao, Y.Nakano, G.Saito, K.Yakushi, S.Koshihara, K.Tanaka, and H.Yamochi, “The effect of a methyl group incorporated in EDO-TTF”, *Physica B*, Vol.405, pp.S75-78, 2010 (DOI: 10.1016/j.physb.2009.10.046)
- B-3: Y. Okimoto, M. Kurashima, K. Seko, T. Ishikawa, K. Onda, S. Koshihara, T. Kyomen, and M. Itoh, “Acceleration of domain wall movement by photoirradiation in perovskite-type cobaltite”, *Phys. Rev. B (Rapid Commun.)* (in press.)
- C-1: Tanaka and K. Yonemitsu, “Growth Dynamics of Photoinduced Domains in Two-Dimensional Charge-Ordered Conductors Depending on Stabilization Mechanisms”, *J. Phys. Soc. Jpn.* 79, 024712 (8 pages) (2010). (DOI: 10.1143/JPSJ.79.024712)

- C-2: Maeshima, K. Yonemitsu and K. Hino, “Photoinduced Dynamics in the One-Dimensional Two-Orbital Degenerate Hubbard Model”, J. Phys.: Conf. Ser. 200, 012109 (4 pages) (2010). (DOI: 10.1088/1742-6596/200/1/012109)
- C-3: S. Miyashita, Y. Tanaka, S. Iwai and K. Yonemitsu, “Charge, Lattice, and Spin Dynamics in Photoinduced Phase Transitions from Charge-Ordered Insulator to Metal in Quasi-Two-Dimensional Organic Conductors”, J. Phys. Soc. Jpn. 79, 034708 (9 pages) (2010). (DOI: 10.1143/JPSJ.79.034708)
- C-4: Y. Tanaka and K. Yonemitsu, “Theory of I-V Characteristics for Two-Dimensional Charge-Ordered Electron Systems at Quarter Filling”, Physica B 405, S211-S213 (2010). (DOI: 10.1016/j.physb.2009.12.065)
- C-5: K. Yonemitsu, S. Miyashita and Y. Tanaka, “Frustration and Lattice Effects on Photoinduced Melting of Charge Orders in Quasi-Two-Dimensional Organic Conductors”, Physica B 405, S369-S372 (2010). (DOI: 10.1016/j.physb.2009.11.105)
- C-6: N. Maeshima, K. Hino and K. Yonemitsu, “Photoinduced Coherent Oscillations in the one-Dimensional Two-Orbital Hubbard Model”, Phys. Rev. B 82, 161105 (4 pages) (2010). (DOI: 10.1103/PhysRevB.82.161105)
- C-7: Y. Kawakami, T. Fukatsu, Y. Sakurai, H. Unno, H. Itoh, S. Iwai, T. Sasaki, K. Yamamoto, K. Yakushi and K. Yonemitsu, “Early-Stage Dynamics of Light-Matter Interaction Leading to the Insulator-to-Metal Transition in a Charge-Ordered Organic Crystal”, Phys. Rev. Lett. 105, 246402 (4 pages) (2010). (DOI: 10.1103/PhysRevLett.105.246402)
- C-8: K. Yonemitsu, Y. Tanaka, S. Miyashita and N. Maeshima, “Photoinduced insulator-to-metal transition dynamics in models for quasi-two-dimensional organic conductors”, Phys. Status Solidi (b) (in press).
- C-9: N. Maeshima, K. Hino and K. Yonemitsu, “Photoinduced dynamics of the multi-orbital Hubbard model”, Phys. Status Solidi (c) 8(1), 213-216 (2011) (DOI: 10.1002/pssc.201000648).
- C-10: Y. Kanamori, H. Matsueda, and S. Ishihara “Numerical Study of Photo-Induced Dynamics in Double-Exchange Model” Phys. Rev. B 82, 115101-1-14 (2010) (DOI:10.1103/PhysRevB.82.115101)
- C-11: M. Naka, and S. Ishihara, “Electronic Ferroelectricity in a Dimer Mott Insulator”, J. Phys. Soc. Jpn. 79, 063707-1-4 (2010) (Editor's Choice) (DOI: 10.1143/JPSJ.79.063707)
- C-12: T. Watanabe, and S. Ishihara, “Quantum Dielectric Fluctuation in an Electronic Ferroelectricity studied by Variational Monte-Carlo Method”, J. Phys. Soc. Jpn. 79, 114714-1-10 (2010) (DOI: 10.1143/JPSJ.79.114714)

- C-13: S. Ishihara, “Electronic ferroelectricity and frustration”, J. Phys. Soc. Jpn. 79, 011010-1-11 (2010) (DOI: 10.1143/JPSJ.79.011010) (invited paper)
- C-14: J. Nasu and S. Ishihara, “Ring-exchange interaction in doubly degenerate orbital system”, J. Phys. Soc. Jpn. 80, 033704 (2011) (DOI:10.1143/JPSJ.80.033704)
- D-1: H. Ichikawa, S. Nozawa, T. Sato, A. Tomita, K. Ichihara, M. Chollet, L. Guerin, N. Dean, A. Cavalleri, S. Adachi, T. Arima, H. Sawa, Y. Ogimoto, M. Nakamura, R. Tamaki, K. Miyano and S. Koshihara, “Transient photoinduced ‘hidden’ phase in a manganite”, Nature Materials 10, 101-105 (2011) (doi:10.1038/nmat2929)

(4-2) 知財出願

- ① 平成22年度特許出願件数(国内 0 件)
- ② CREST 研究期間累積件数(国内 0 件)